

PATENT APPLICATION

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of

Docket No: Q79018

Toshihiro ISE, *et al.*

Appln. No.: 10/735,700

Group Art Unit: 2875

Confirmation No.: 3450

Examiner: not yet assigned

Filed: December 16, 2003

For: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

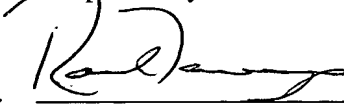
SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

Submitted herewith is a certified copy of the priority document on which a claim to priority was made under 35 U.S.C. § 119. The Examiner is respectfully requested to acknowledge receipt of said priority document.

Respectfully submitted,


for Mark Boland
Registration No. 32,197

REG. NO.
47,125

SUGHRUE MION, PLLC
Telephone: (202) 293-7060
Facsimile: (202) 293-7860

WASHINGTON OFFICE

23373

CUSTOMER NUMBER

Enclosures: Japan 2002-365281

Date: April 22, 2004

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2 0 0 2 年 1 2 月 1 7 日

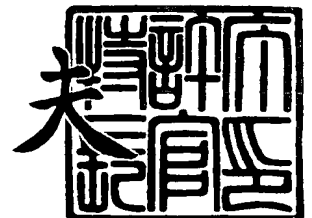
出 願 番 号
Application Number: 特 願 2 0 0 2 - 3 6 5 2 8 1
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 2 - 3 6 5 2 8 1]

出 願 人
Applicant(s): 富士写真フイルム株式会社

2 0 0 4 年 1 月 2 3 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 31-2876

【提出日】 平成14年12月17日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H05B 33/14

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内

 【氏名】 伊勢 俊大

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内

 【氏名】 五十嵐 達也

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内

 【氏名】 岡田 久

【特許出願人】

 【識別番号】 000005201

 【氏名又は名称】 富士写真フイルム株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100105647

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 小栗 昌平

 【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100105474

【弁理士】

【氏名又は名称】 本多 弘徳

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100108589

【弁理士】

【氏名又は名称】 市川 利光

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100115107

【弁理士】

【氏名又は名称】 高松 猛

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100090343

【弁理士】

【氏名又は名称】 栗宇 百合子

【電話番号】 03-5561-3990

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 092740

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0003489

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

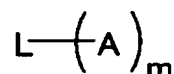
【発明の名称】 有機電界発光素子

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 一对の電極間に、発光層と電子輸送層とを少なくとも含む有機層を有する有機電界発光素子であって、発光層は、りん光発光材料と、ホスト材料として機能する金属錯体とを各々少なくとも一種含有し、電子輸送層は下記一般式 (E-I) で表される化合物を含有する有機電界発光素子。

【化 1】

一般式 (E-I)

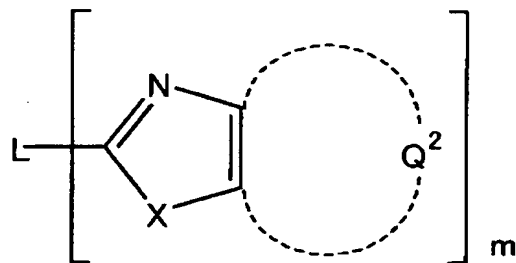


(式中、A は二つ以上の芳香族ヘテロ環が縮合した一価のヘテロ環基を表し、A で表されるヘテロ環基は同一又は異なってもよい。m は 2 以上の整数を表す。L は m 価の連結基を表す。)

【請求項 2】 一般式 (E-I) で表される化合物が、下記一般式 (E-II) で表される請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

【化 2】

一般式 (E-II)



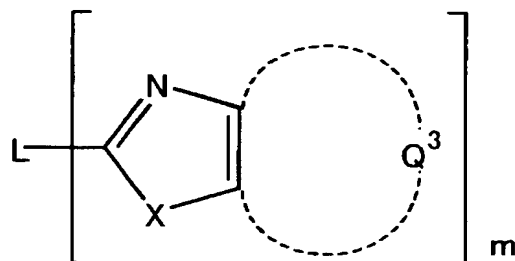
(式中、X は O、S、Se、Te 又は N-R を表す。R は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、又はヘテロ環基を表す。Q² は芳香族ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。m は 2 以上の整数を表す。L は m 価の連結基を表す。)

)

【請求項 3】 一般式 (E-I) で表される化合物が、下記一般式 (E-III) で表される請求項 1 又は 2 に記載の有機電界発光素子。

【化 3】

一般式 (E-III)

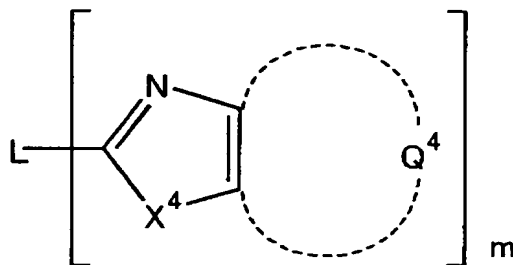


(式中、XはO、S、Se、Te又はN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、又はヘテロ環基を表す。Q³は含窒素芳香族ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lはm価の連結基を表す。)

【請求項 4】 一般式 (E-I) で表される化合物が、下記一般式 (E-IV) で表される請求項 1～3 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【化 4】

一般式 (E-IV)

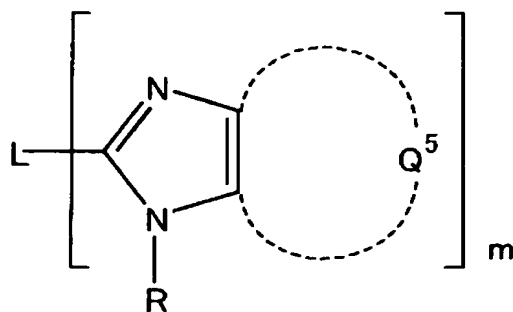


(式中、X⁴はO、S又はN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、又はヘテロ環基を表す。Q⁴は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。mは2～8の整数を表す。Lはm価の連結基を表す。)

【請求項 5】一般式 (E-I) で表される化合物が、下記一般式 (E-V) で表される請求項 1～4 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【化 5】

一般式 (E-V)

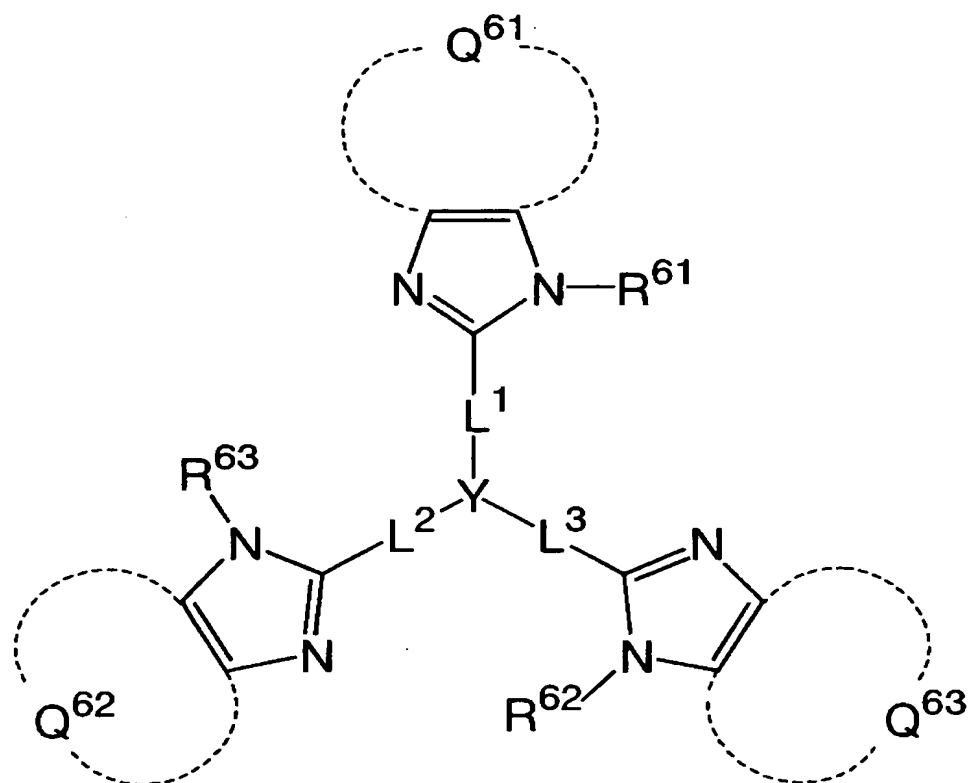


(式中、Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、又はヘテロ環基を表す。Q⁵は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2～8の整数を表す。Lはm価の連結基を表す。)

【請求項 6】一般式 (E-I) で表される化合物が、下記一般式 (E-VI) で表される請求項 1～5 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【化 6】

一般式 (E-VI)

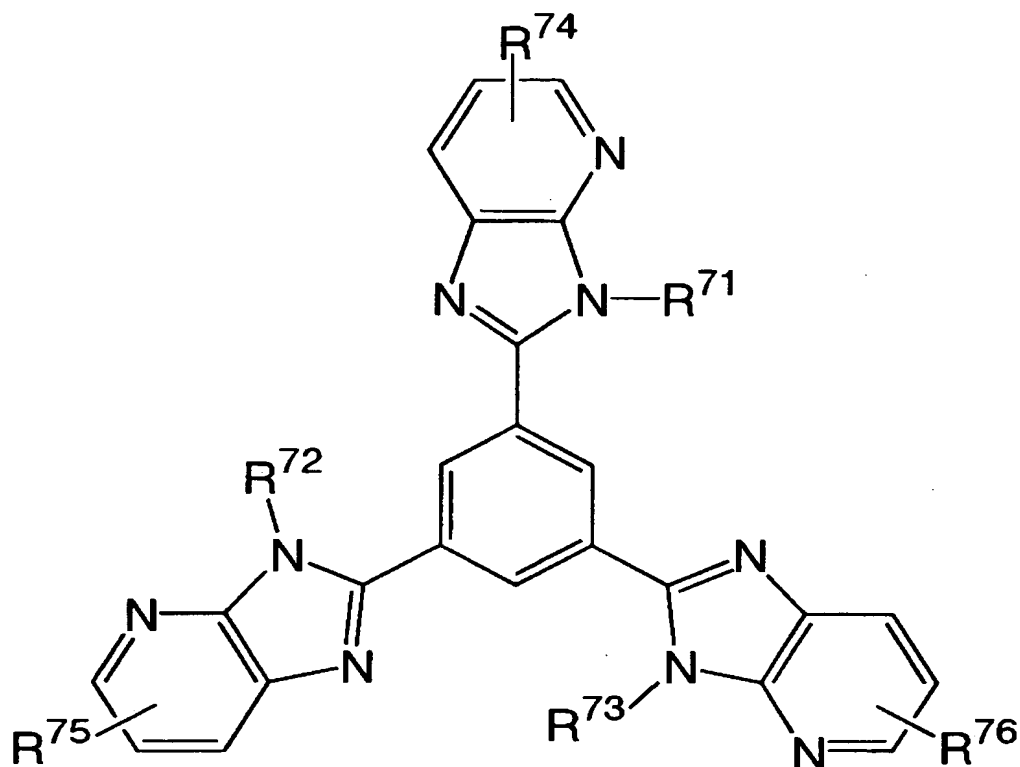


(式中、 Q^{61} 、 Q^{62} 、及び Q^{63} は、各々 6 員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。 R^{61} 、 R^{62} 、及び R^{63} は各々水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、又はヘテロ環基を表す。 L^1 、 L^2 、及び L^3 は各々二価の連結基を表す。 Y は窒素原子、又は 1, 3, 5-ベンゼントリイル基を表す。)

【請求項 7】一般式 (E-I) で表される化合物が、下記一般式 (E-VII) で表される請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【化 7】

一般式 (E-VII)



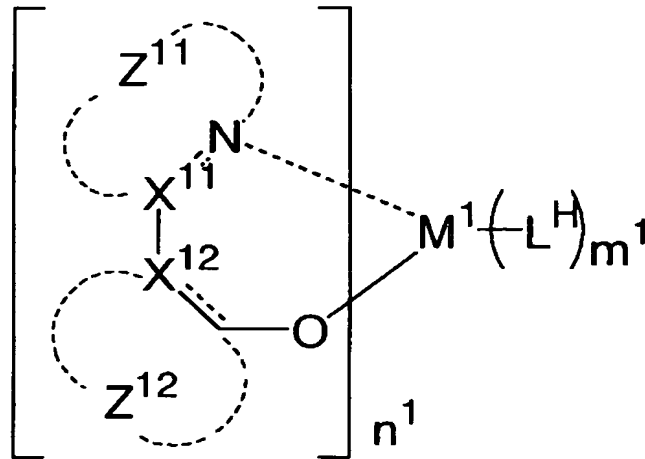
(式中、 R^{71} 、 R^{72} 、及び R^{73} は各々水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、又はヘテロ環基を表す。 R^{74} 、 R^{75} 、及び R^{76} は各々置換基を表す。 p^1 、 p^2 、及び p^3 は各々0～3の整数を表す。)

【請求項 8】発光層と電子輸送層との間に他の層を有しない請求項 1～7 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項 9】ホスト材料として機能する金属錯体が、下記一般式 (H-1) で表される請求項 1～8 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【化 8】

一般式 (H-1)



(式中、 X^{11} 、 X^{12} は各々炭素原子、又は窒素原子を表す。 X^{11} と窒素原子間、 X^{12} と炭素原子間の結合は単結合又は二重結合を表す。 Z^{11} 、 Z^{12} は各々5員環又は6員環の形成に必要な原子群を表す。 M^1 は金属イオンを表す。 n^1 は1以上の整数を表す。 L^H は配位子を表し、 m^1 は0以上の整数を表す。)

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、高輝度で発光効率が高く、耐久性に優れる有機電界発光素子（有機EL素子）に関する。

【0002】

【従来の技術】

有機EL素子は、低電圧駆動で高輝度の発光が得られることから、近年活発な研究開発が行われている。一般に有機EL素子は、発光層もしくは発光層を含む複数の有機層を挟んだ対向電極から構成されており、陰極から注入された電子と陽極から注入された正孔が発光層において再結合し、生成した励起子からの発光

を利用するもの、又は前記励起子からエネルギー移動によって生成する他の分子の励起子からの発光を利用するものである。

【0 0 0 3】

金属錯体をホスト材料として用いたりん光発光性有機 E L 素子に関する発明が開示されたが（特許文献 1 参照）、該特許文献では実施例において電子輸送材料としてトリス（8 - ヒドロキシキノリン）アルミニウム錯体（Alq）を用い、また発光層と電子輸送層（Alq 層）との間に正孔阻止層として該特許文献中で HB-1 にと称されるアルミニウム錯体層を挟持している。そのため、発光効率、耐久性はいまだ充分ではなく、高発光輝度、発光効率を示し、かつ耐久性に優れた素子の開発が切望されている。

【0 0 0 4】

【特許文献 1】

特開 2 0 0 2 - 3 0 5 0 8 3 号公報

【0 0 0 5】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、高い発光輝度、発光効率を示し、かつ耐久性にも優れた有機 E L 素子を提供にあり、さらに発光層と電子輸送層との間に他の層を有しない簡便な構造を有する有機 E L 素子の提供にある。

【0 0 0 6】

【課題を解決するための手段】

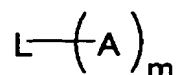
前記課題は下記により達成された。

（1）一対の電極間に、発光層と電子輸送層とを少なくとも含む有機層を有する有機電界発光素子であって、発光層は、りん光発光材料と、ホスト材料として機能する金属錯体とを各々少なくとも一種含有し、電子輸送層は下記一般式（E - I）で表される化合物を含有する有機電界発光素子。

【0 0 0 7】

【化9】

一般式(E-I)



【0008】

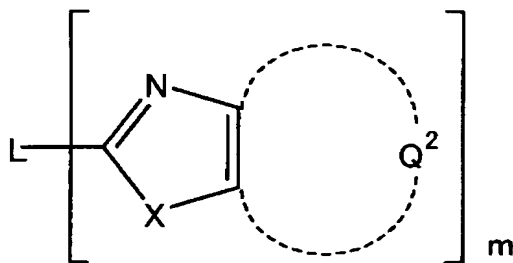
(式中、Aは二つ以上の芳香族ヘテロ環が縮合した一価のヘテロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一又は異なってもよい。mは2以上の整数を表す。Lはm価の連結基を表す。)

(2) 一般式(E-I)で表される化合物が、下記一般式(E-II)で表される前記1に記載の有機電界発光素子。

【0009】

【化10】

一般式(E-II)



【0010】

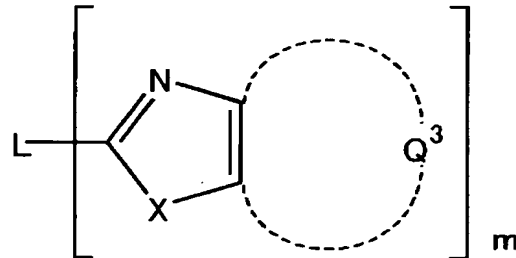
(式中、XはO、S、Se、Te又はN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、又はヘテロ環基を表す。Q²は芳香族ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lはm価の連結基を表す。)

(3) 一般式(E-I)で表される化合物が、下記一般式(E-III)で表される前記1又は2に記載の有機電界発光素子。

【0011】

【化11】

一般式(E-III)



【0012】

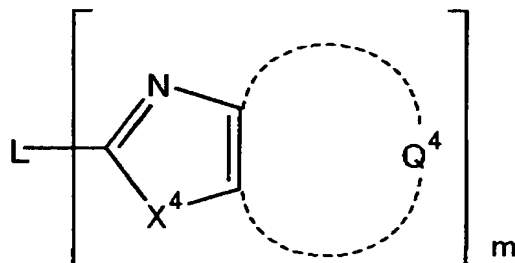
(式中、XはO、S、Se、Te又はN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、又はヘテロ環基を表す。Q³は含窒素芳香族ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lはm価の連結基を表す。)

(4) 一般式(E-I)で表される化合物が、下記一般式(E-IV)で表される前記1~3のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【0013】

【化12】

一般式(E-IV)



【0014】

(式中、X⁴はO、S又はN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、又はヘテロ環基を表す。Q⁴は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。mは2~8の整数を表す。Lはm価の連結基を表す。)

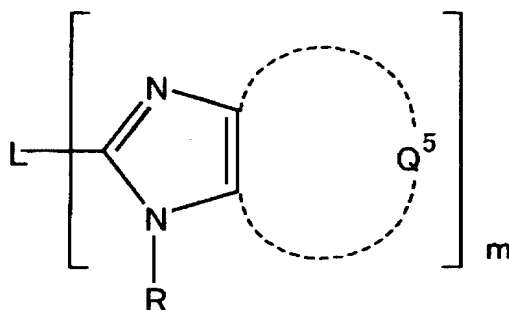
。)

(5) 一般式 (E-I) で表される化合物が、下記一般式 (E-V) で表される前記 1 ~ 4 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【0015】

【化13】

一般式 (E-V)



【0016】

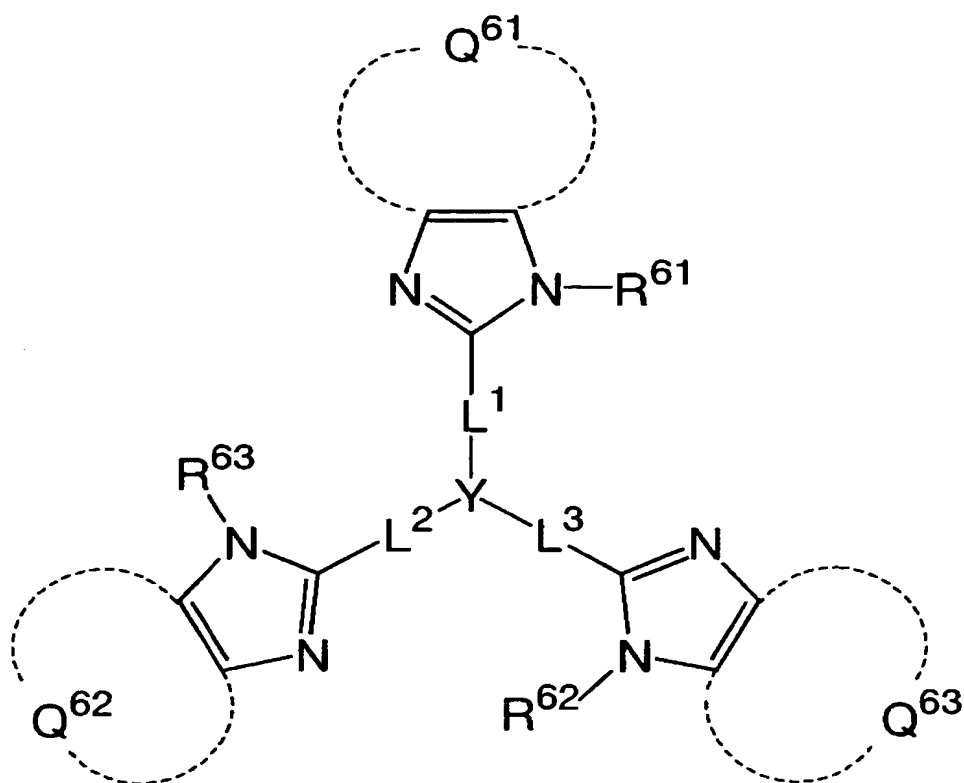
(式中、Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、又はヘテロ環基を表す。Q⁵は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2 ~ 8の整数を表す。Lはm個の連結基を表す。)

(6) 一般式 (E-I) で表される化合物が、下記一般式 (E-VI) で表される前記 1 ~ 5 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【0017】

【化 14】

一般式 (E-VI)



【0018】

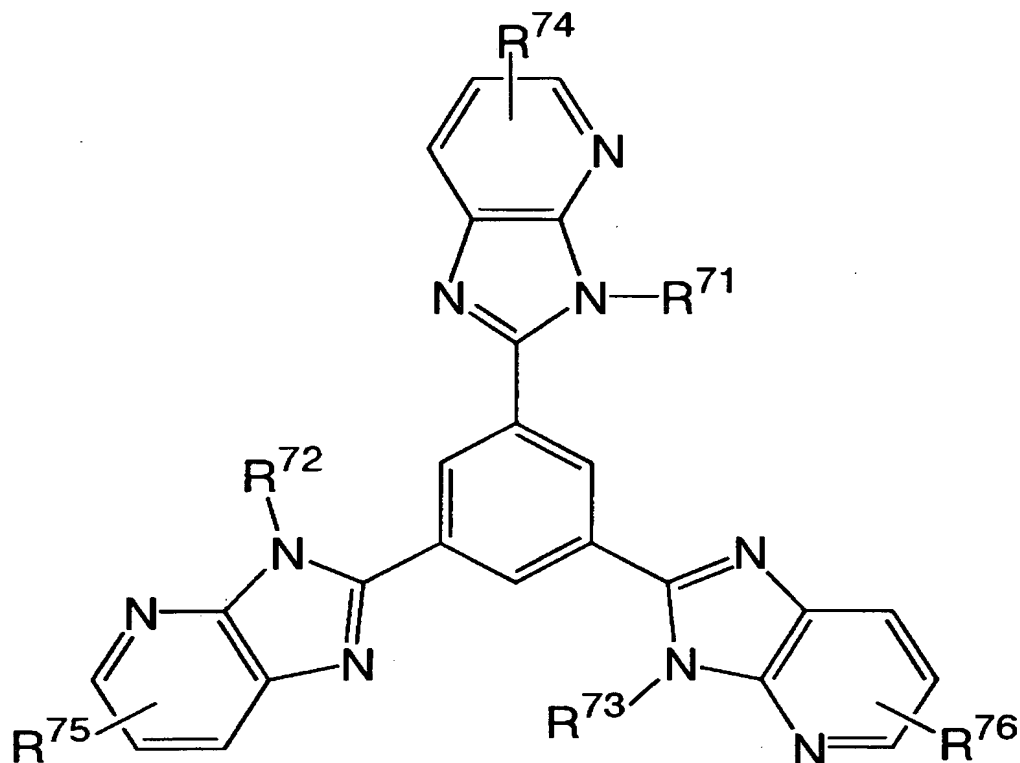
(式中、Q⁶¹、Q⁶²、及びQ⁶³は、各々6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。R⁶¹、R⁶²、及びR⁶³は各々水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、又はヘテロ環基を表す。L¹、L²、及びL³は各々二価の連結基を表す。Yは窒素原子、又は1, 3, 5-ベンゼントリイル基を表す。)

(7) 一般式 (E-I) で表される化合物が、下記一般式 (E-VII) で表される前記1～6のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【0019】

【化 15】

一般式 (E-VII)



【0020】

(式中、 R^{71} 、 R^{72} 、及び R^{73} は各々水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、又はヘテロ環基を表す。 R^{74} 、 R^{75} 、及び R^{76} は各々置換基を表す。 p^1 、 p^2 、及び p^3 は各々0～3の整数を表す。)

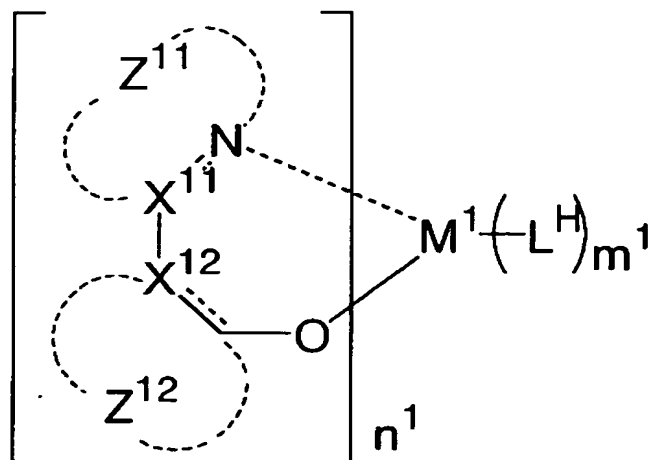
(8) 発光層と電子輸送層との間に他の層を有しない前記1～7のいずれかに記載の有機電界発光素子。

(9) ホスト材料として機能する金属錯体が、下記一般式(H-1)で表される前記1～8のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【0021】

【化 16】

一般式 (H-I)



【0022】

(式中、 X^{11} 、 X^{12} は各々炭素原子、又は窒素原子を表す。 X^{11} と窒素原子間、 X^{12} と炭素原子間の結合は単結合又は二重結合を表す。 Z^{11} 、 Z^{12} は各々5員環又は6員環の形成に必要な原子群を表す。 M^1 は金属イオンを表す。 n^1 は1以上の整数を表す。 L^H は配位子を表し、 m^1 は0以上の整数を表す。)

【0023】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の有機EL素子について詳細に説明する。本発明の発光素子は、一対の電極間に、発光層と電子輸送層とを少なくとも含む有機層を有する有機電界発光素子であって、発光層は、りん光発光材料と、ホスト材料として機能する金属錯体とを各々少なくとも一種含有し、電子輸送材料として機能する一般式(E-I)で表される化合物を電子輸送層に含有する有機電界発光素子である。また、一対の電極間には発光層、電子輸送層の他に、正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、保護層等が配置してもよく、これらの各層は層の名前以外の他の機能を兼備したものであっても良い。本発明において、一般式(E-I)で表される

化合物は電子輸送層に含有され、電子輸送材料として機能するのが好ましい。

【0024】

ホスト材料として機能する金属錯体（本発明の金属錯体）はホスト材料として機能するが、発光層に含有される材料のうち、りん光発光材料（りん光材料）以外の材料であり、以下の各種の機能（上記各種機能）：

発光材料（本発明ではりん光材料）を分散して層中に保持する機能、

陽極や正孔輸送層等から正孔を受け取る機能、

陰極や電子輸送層等から電子を受け取る機能、

正孔又は電子を輸送する機能、

正孔と電子の再結合の場を提供する機能、

再結合により生成した励起子のエネルギーを発光材料に移動させる機能、及び

正孔又は電子を発光材料に輸送する機能のうち少なくとも一種の機能、

を有する材料を意味する。

【0025】

上記各種機能のうち、正孔又は電子を輸送する機能、及び再結合により生成した励起子のエネルギーを発光材料に移動させる機能の少なくとも一つの機能を有する材料であることが好ましく、少なくとも二つの機能を有する材料であることがより好ましい。さらに本発明の金属錯体は、正孔又は電子を輸送する機能、及び再結合により生成した励起子のエネルギーを発光材料に移動させる機能以外の上記各種機能を兼ね備えてもよい。

【0026】

本発明の金属錯体は、ホスト材料として機能するために、発光層中において主成分であることが好ましい。本発明の金属錯体の発光層中における含有率は、好ましくは50%～99.9質量%であり、より好ましくは60%～99質量%である。

【0027】

ホスト材料として用いられる本発明の金属錯体は、上記の機能を果たす際に電気化学的に酸化もしくは還元されうるため、電気化学的酸化及び還元に対して非常に安定であるものが好ましい。言い換えれば、酸化種（例えばラジカルカチオ

ン種) 及び還元種 (例えばラジカルアニオン種) が非常に安定なものが好ましい。

また、本発明の金属錯体で再結合が行われる場合には、まずホスト材料の励起子が生成することから、本発明の金属錯体の励起状態は分解や熱失活を引き起こさず安定であることが好ましい。このことはすなわち、光に対しても安定な本発明の金属錯体が好ましいことをも意味する。

【0028】

有機EL素子では、駆動時の発熱による膜の破壊や材料の分解が劣化の大きな要因であることから、本発明の金属錯体は熱による分解がなく、高温まで安定なアモルファス膜を保持できる材料であることが好ましい。

【0029】

しかし、ホスト材料として性能が高く耐久性に優れた材料を使用したとしても、電子輸送材料として性能が低いものを用いたり、正孔阻止層の設置により再結合効率を上げる方法は、素子の特性が低下したり耐久性が悪化する原因となる。

【0030】

本発明者らは、金属錯体をホスト材料に用い、かつ電子輸送材料にある特定の構造を有する化合物を発光層に用いることにより、上記課題が達成されることを見出した。特に、ある特定構造を有する金属錯体を用いることでさらに有機EL素子の発光性能等が向上することが分かった。また、本発明者らは、ある特定構造の金属錯体をホスト材料に用い、かつ正孔阻止層を設けないりん光発光性有機EL素子により、上記課題が達成されることを見出した。

【0031】

発光素子の耐久性を考慮した場合、本発明の金属錯体のガラス転移温度 (T_g) は、 130°C 以上 400°C 以下であることが好ましく、より好ましくは 135°C 以上 400°C 以下であり、さらに好ましくは 140°C 以上 400°C 以下であり、特に好ましくは 150°C 以上 400°C 以下であり、最も好ましくは 160°C 以上 400°C 以下である。 T_g は、示差走査熱量測定 (DSC)、示差熱分析 (DTA) 等の熱測定や、X線回折 (XRD)、偏光顕微鏡観察等により確認できる。

【0032】

本発明の金属錯体の金属種は特に限定されないが、第2～第4周期の金属が好ましく、より好ましくはLi、Be、Na、Mg、Al、K、Ca、Sc、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Ga、Geであり、より好ましくは、Li、Be、Na、Mg、Al、Ti、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Gaであり、さらに好ましくはBe、Mg、Al、Fe、Ni、Cu、Znであり、さらに好ましくはBe、Mg、Al、Cu、Znであり、特に好ましくはAl、Znである。

【0033】

本発明の金属錯体は、同一分子中に複数の金属イオンを有するいわゆる複核錯体であっても良い。また、複数種の金属からなる複核錯体であっても良い。また、複数種の配位子を有していても良い。本発明における金属錯体は、中性の金属錯体であることが好ましい。

【0034】

本発明の金属錯体は、好ましくは一般式(H-1)で表される金属錯体である。一般式(H-1)中、X¹¹、X¹²は各々炭素原子又は窒素原子を表す。X¹¹と窒素原子間、X¹²と炭素原子間の結合は単結合であっても二重結合であっても良い。Z¹¹、Z¹²は各々5員環又は6員環の形成に必要な原子群を表す。M¹は金属イオンを表す。n¹は1以上の整数を表す。L^Hは配位子を表し、m¹は0以上の整数を表す。

【0035】

一般式(H-1)中で、X¹¹と窒素原子間及びX¹²と炭素原子間の結合は実線と点線の二本線で描かれているが、これは結合が単結合であっても二重結合であっても良いことを表す。

【0036】

Z¹¹は、X¹¹と窒素原子とを含んで、5員環又は6員環を形成するのに必要な原子群を表す。Z¹¹を含む環は置換基を有していてもよく、置換基としては、下記の置換基群Aが挙げられる。

【0037】

(置換基群 A)

アルキル基（好ましくは炭素数 1～20、より好ましくは炭素数 1～12、特に好ましくは炭素数 1～8 であり、例えばメチル、エチル、i s o-プロピル、t e r t-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数 2～20、より好ましくは炭素数 2～12、特に好ましくは炭素数 2～8 であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数 2～20、より好ましくは炭素数 2～12、特に好ましくは炭素数 2～8 であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニル等が挙げられる。）、アリール基（好ましくは炭素数 6～30、より好ましくは炭素数 6～20、特に好ましくは炭素数 6～12 であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチル等が挙げられる。）、置換カルボニル基（好ましくは炭素数 1～20、より好ましくは炭素数 1～16、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばアセチル、ベンゾイル、メトキシカルボニル、フェニルオキシカルボニル、ジメチルアミノカルボニル、フェニルアミノカルボニル、等が挙げられる。）、アミノ基（好ましくは炭素数 0～20、より好ましくは炭素数 1～16、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばジメチルアミノ、メチルカルボニルアミノ、エチルスルフォニルアミノ、ジメチルアミノカルボニルアミノ基、フタルイミド基等が挙げられる。）、スルホニル基（好ましくは炭素数 1～20、より好ましくは炭素数 1～16、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばメシル、トシル等が挙げられる。）、スルホ基、カルボキシ基、ヘテロ環基（脂肪族ヘテロ環基、芳香族ヘテロ環基がある。好ましくは、酸素原子、硫黄原子、窒素原子のいずれかを含み、好ましくは炭素数 1～50、より好ましくは炭素数 1～30、特に好ましくは炭素数 2～12 であり、例えばイミダゾリル、ピリジル、フリル、ピペリジル、モルホリノ、ベンゾオキサゾリル、トリアゾリル基等が挙げられる。）、

【0038】

ヒドロキシ基、アルコキシ基（好ましくは炭素数 1～20、より好ましくは炭素数 1～16、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばメトキシ基、ベンジ

ルオキシ基等が挙げられる。)、アリアルオキシ基(好ましくは炭素数6~20、より好ましくは炭素数6~16、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェノキシ基、ナフチルオキシ基等が挙げられる。)、ハロゲン原子(好ましくはフッ素原子、塩素原子、臭素原子、沃素原子)、チオール基、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメチルチオ基等が挙げられる)、アリアルチオ基(好ましくは炭素数6~20、より好ましくは炭素数6~16、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルチオ基等が挙げられる)、シアノ基、シリル基(好ましくは炭素数0~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~18であり、例えばトリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、t-ブチルジフェニルシリル基等が挙げられる)等が挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。またZ¹¹を含む環は他の環と縮合環を形成していても良い。

【0039】

上記Z¹¹を含む環としては、例えばピリジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、ピラジン環、キノリン環、キノキサリン環、イソキノリン環、シンノリン環、フタラジン環、キナゾリン環、トリアジン環、アクリジン環、フェナジン環、フェナントロリン環、ナフチリジン環、フェナントリジン環、ピロール環、インドール環、ピラゾール環、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、オキサゾール環、ベンゾオキサゾール環、チアゾール環、ベンゾチアゾール環、セレナゾール環、ベンゾセレナゾール環、インダゾール環、イソチアゾール環、イソオキサゾール環、トリアゾール環、ベンゾトリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、チアトリアゾール環、アザインドール環、イミダゾピリジン環、プリン環、イミダゾリン環等が挙げられ、好ましくはピリジン環、ピリミジン環、ピラジン環、キノリン環、キノキサリン環、イソキノリン環、フタラジン環、ピロール環、インドール環、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、オキサゾール環、ベンゾオキサゾール環、チアゾール環、ベンゾチアゾール環、トリアゾール環、ベンゾトリアゾール環、イミダゾピリジン環であり、さらに好ましくは、イミダゾピリジン環である。

【0040】

Z^{12} は、 X^{12} と、炭素原子（式中の酸素原子と結合した炭素原子）とを含んで、5員環又は6員環を形成するのに必要な原子群を表す。 Z^{12} を含む環は置換基を有していてもよく、置換基としては、 Z^{11} を含む環の置換基として挙げたものが適用でき、好ましい範囲も同様である。

【0041】

Z^{12} を含む環としては、例えば、シクロペンテン、シクロヘキセン、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フェナントレン、ピレン、ペリレン、ピリジン、キノリン、フラン、チオフェン、ピラジン、ピリミジン、チアゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチアゾール、オキサゾール、ベンゾオキサゾール、ナフトオキサゾール、イソオキサゾール、セレナゾール、ベンゾセレナゾール、ナフトセレナゾール、イミダゾール、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾール、イソキノリン、ピラゾール、トリアゾール等が挙げられる。 Z^{12} を含む環は、芳香環であることが好ましい。例えば、好ましくは、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、ピリジン、チオフェン、ピラジン、ピリミジンであり、より好ましくはベンゼン、ナフタレンであり、さらに好ましくはベンゼンである。 Z^{11} の置換基と Z^{12} の置換基は結合して環を形成していても良い。

【0042】

M^1 は金属イオンを表す。金属イオンとしては特に限定されないが、好ましくは周期律表（長周期型）の第2周期～第4周期に含まれる金属のイオンであり、より好ましくは二価もしくは三価の金属イオンであり、さらに好ましくは、 Be^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Al^{3+} 、 Zn^{2+} 、 Cu^{2+} であり、特に好ましくは、 Al^{3+} 、 Zn^{2+} である。

【0043】

L^H は単座又は多座の配位子を表す。配位子として、ハロゲンイオン（例えば Cl^- 、 Br^- 、 I^- 等が挙げられる）、パークロレートイオン、アルコキシイオン（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは1～10、さらに好ましくは1～5であり、例えばメトキシイオン、エトキシイオン、イソプロポキシイオン、アセチルアセトネートイオン等が挙げられる）、アリアルオキシイオン（好まし

くは炭素数 6～20、より好ましくは 6～12、さらに好ましくは 6～8 であり、例えばフェノキシイオン、キノリノールイオン、2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾアゾールイオン等が挙げられる)、含窒素ヘテロ環(好ましくは炭素数 1～20、より好ましくは 2～10、さらに好ましくは 3～8 であり、フェナンスレン、ビピリジル等が挙げられる)、アシルオキシイオン(好ましくは炭素数 1～20、より好ましくは 2～10、さらに好ましくは 3～8 であり、アセトキシイオン等が挙げられる)、エーテル化合物(好ましくは炭素数 2～20、特に好ましくは 3～10、さらに好ましくは 3～8 であり、テトラヒドロフラン等が挙げられる)、ヒドロキシイオン等が挙げられる。より好ましくはアルコキシイオン、アリールオキシイオンであり、特に好ましくはアリールオキシイオンである。

【0044】

n^1 は 1 以上の整数を表し、 m^1 は 0 以上の整数を表す。 n^1 、 m^1 の好ましい範囲は金属イオンにより異なり特に限定されないが、 n^1 は 1～4 が好ましく、より好ましくは 1～3 であり、特に好ましくは、2、又は 3 である。 m^1 は 0～2 が好ましく、より好ましくは 0、又は 1 であり、特に好ましくは 0 である。 n^1 、 m^1 の数の組み合わせは、一般式 (H-I) で表される金属錯体が中性錯体となる数の組み合わせが好ましい。

【0045】

一般式 (H-I) で表される金属錯体としては、例えば特開 2000-302754 に記載のイミダゾピリジン誘導体の金属錯体、特開平 8-301877、特開平 8-306489、特開平 9-279134、特開平 7-133483、特開 2000-200684、特開 2000-252066、特開 2000-247972、特開 2000-173777 等に記載のベンゾオキサゾール誘導体の金属錯体、特開 2000-302754、特開 2000-252067 等に記載のオキサゾール誘導体の金属錯体、特開平 8-113576、特開 2000-200684、特開 2000-247964、特開平 10-45722、特表 2000-515926 等に記載のベンゾチアゾール誘導体の金属錯体、特開 2001-131162、特開 2000-302754、特開 2000-25206

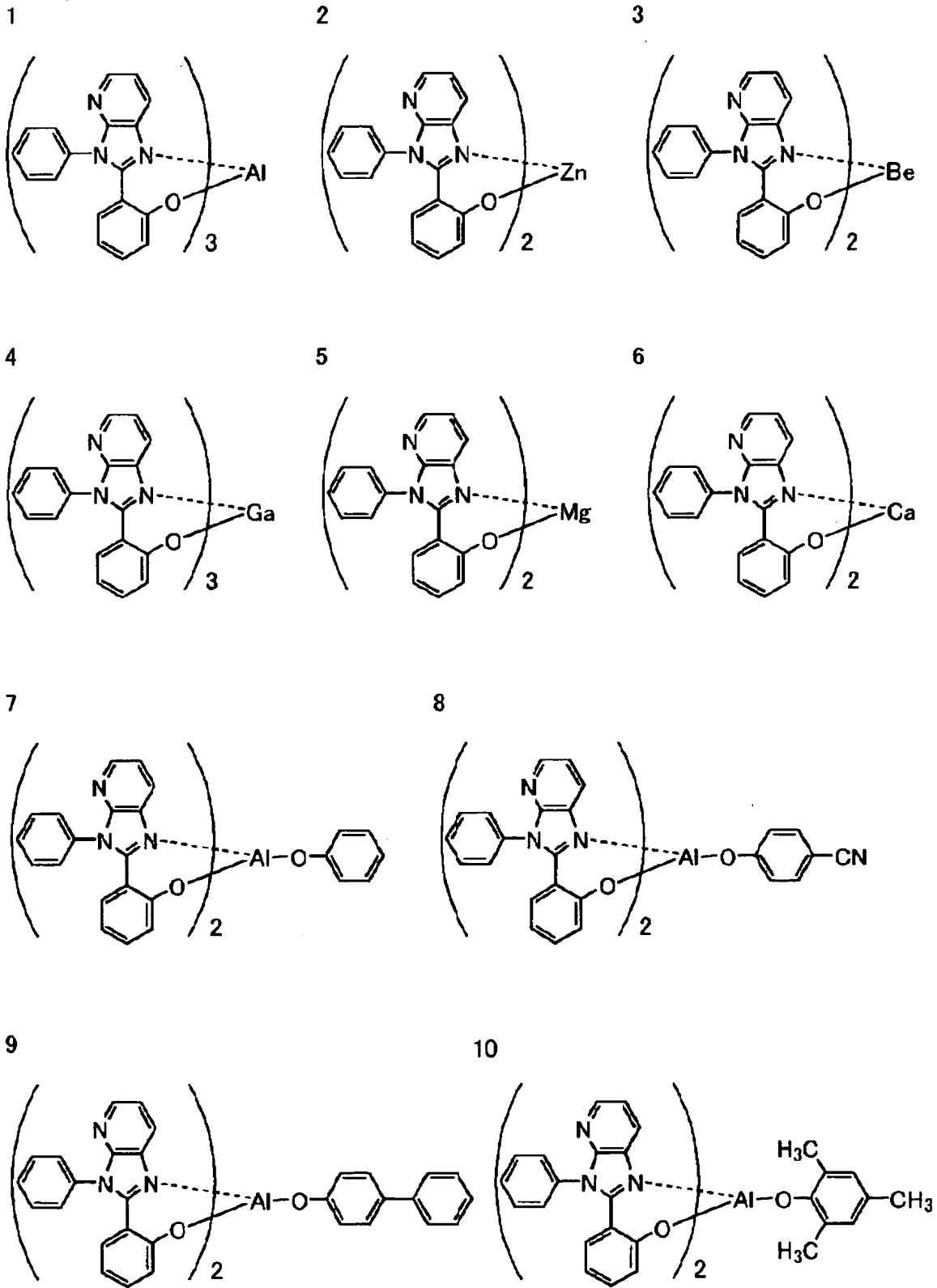
7 等に記載のチアゾール誘導体の金属錯体、特開 2000-200684、特開平 10-265478 等に記載のベンゾイミダゾール誘導体の金属錯体、特開 2000-302754、特開 2000-252067 等に記載のイミダゾール誘導体の金属錯体、特開平 9-111234 等に記載のベンゾトリアゾール誘導体の金属錯体及びベンゾピラゾール誘導体の金属錯体、特開 2000-357588、特開平 9-176629 等に記載のヒドロキシフェニル置換ピリジン誘導体の金属錯体、特開平 9-20886、特開 2000-12222 等に記載のヒドロキシ置換ベンゾキノリン誘導体の金属錯体、特開平 9-20885 等に記載のヒドロキシ置換ピリドキノリン誘導体の金属錯体、特開 2000-100570 等に記載のヒドロキシフェニル置換トリアゾール誘導体の金属錯体、特開平 10-259372 等に記載のヒドロキシフェニル置換オキサジアゾール又はチアジアゾール誘導体の金属錯体、特開 2001-57292 等に記載のヒドロキシフェニル置換イミダゾピリジンの金属錯体等が好適に利用できる。

【0046】

以下に一般式 (H-I) で表される金属錯体の具体例を列举するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0047】

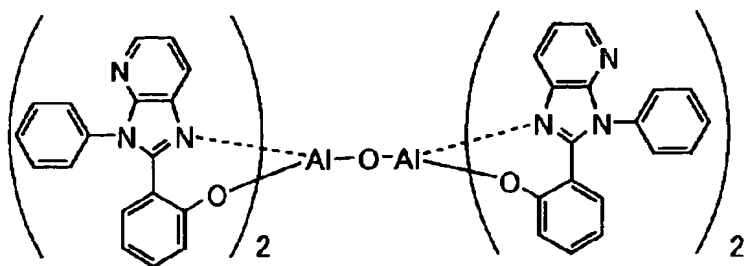
【化 17】



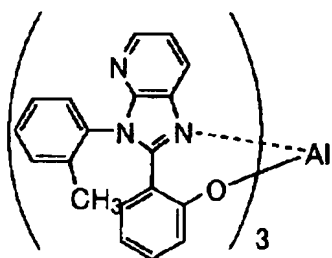
【0048】

【化 18】

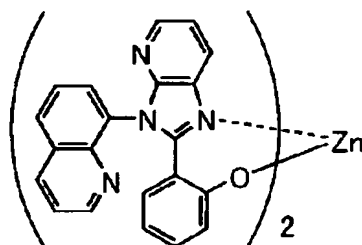
11



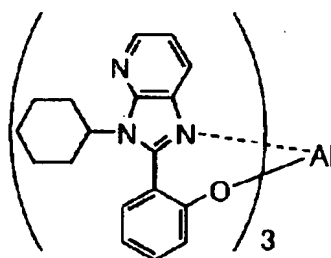
12



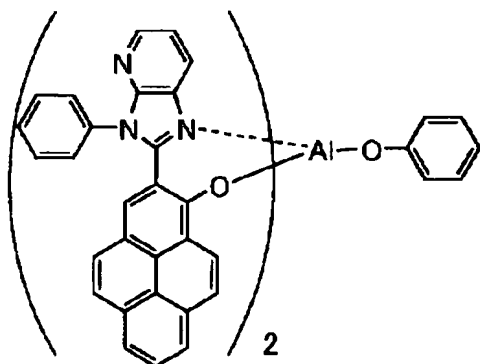
13



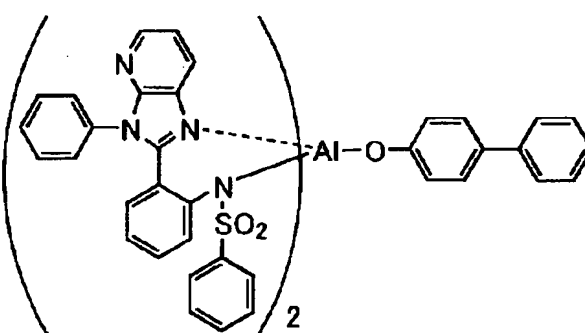
14



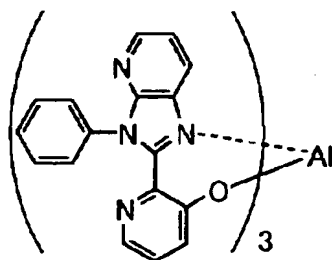
15



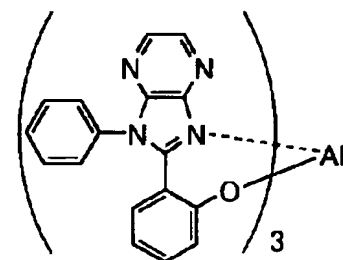
16



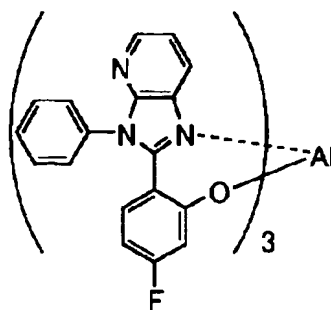
17



18

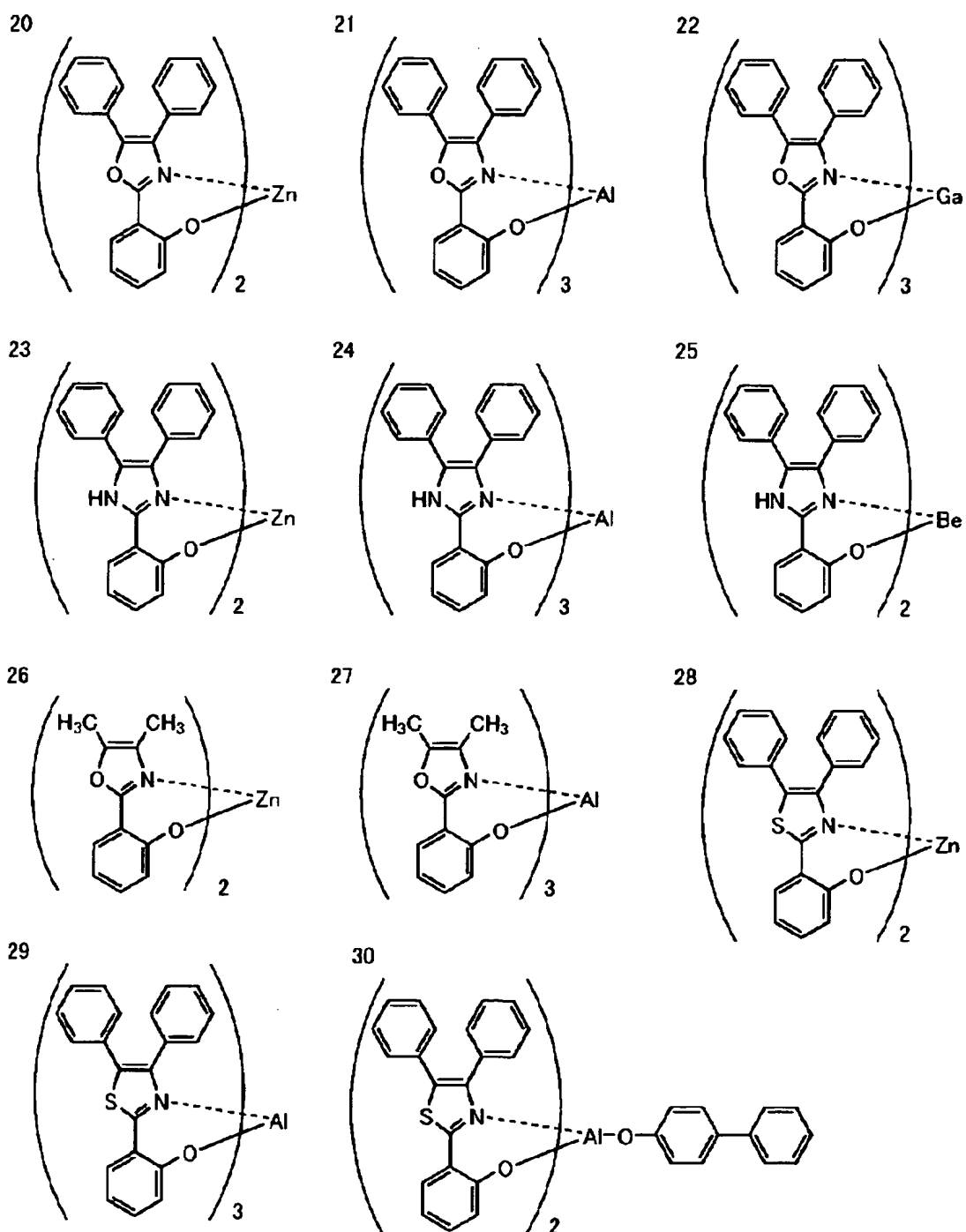


19



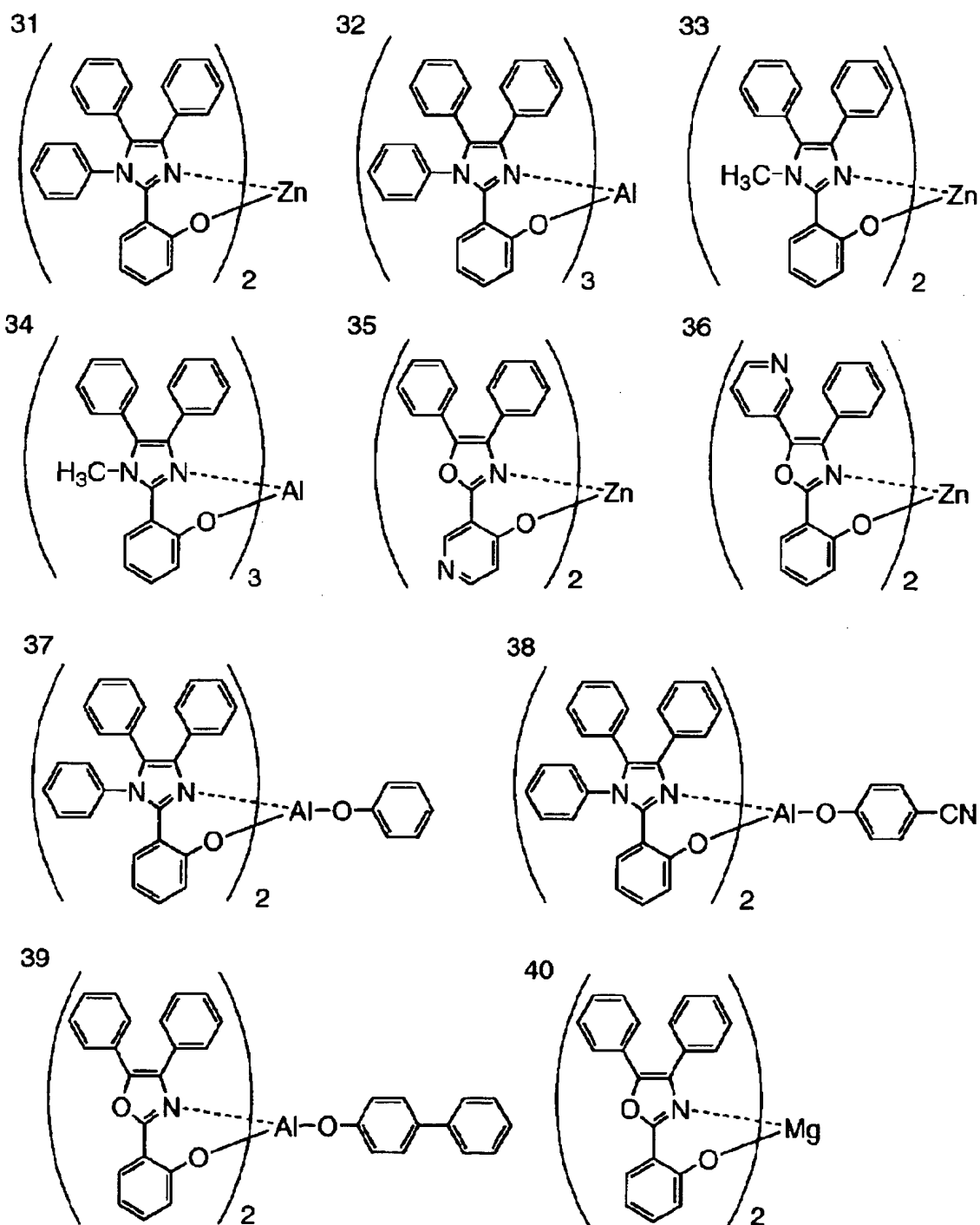
【0049】

【化19】



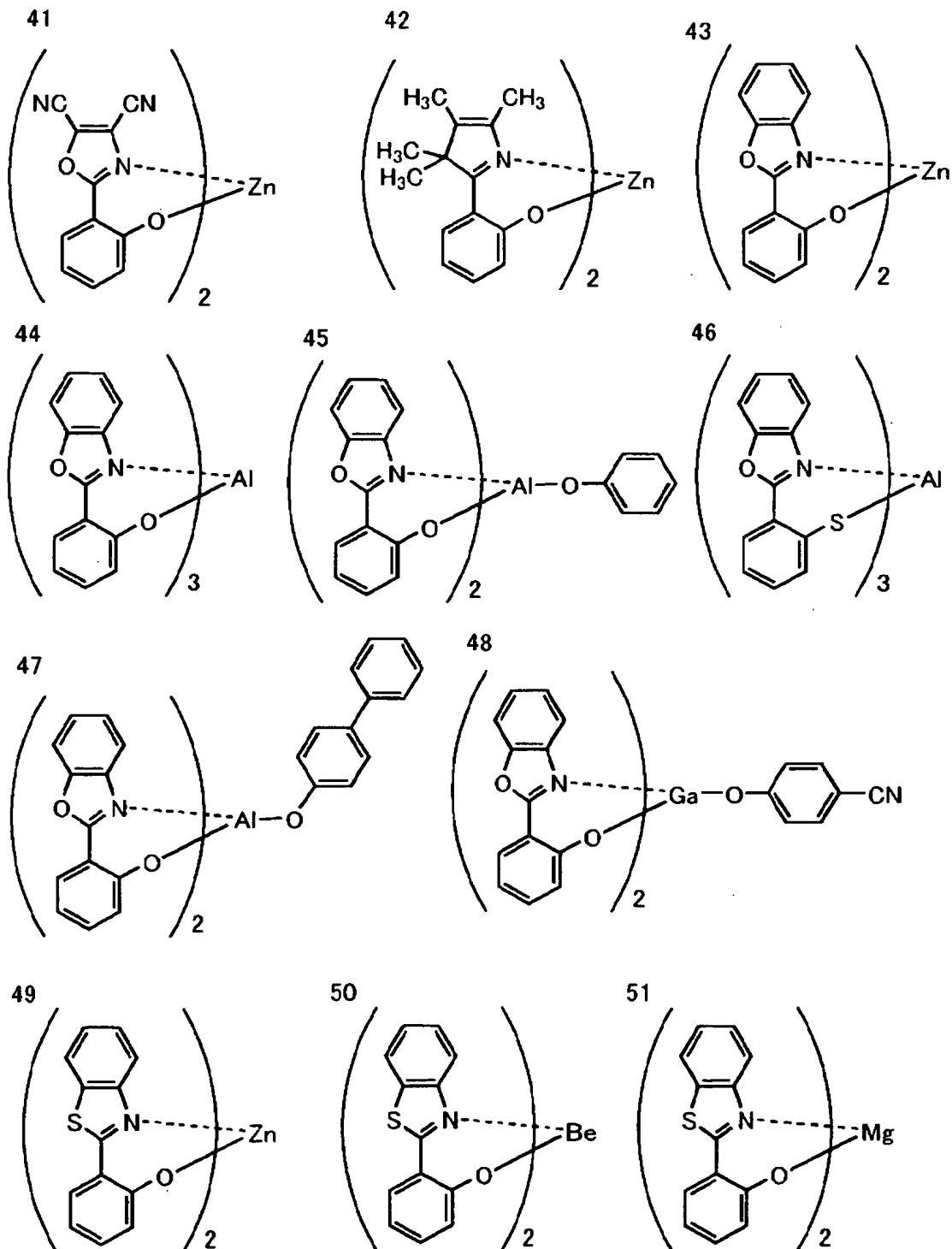
【0050】

【化 20】



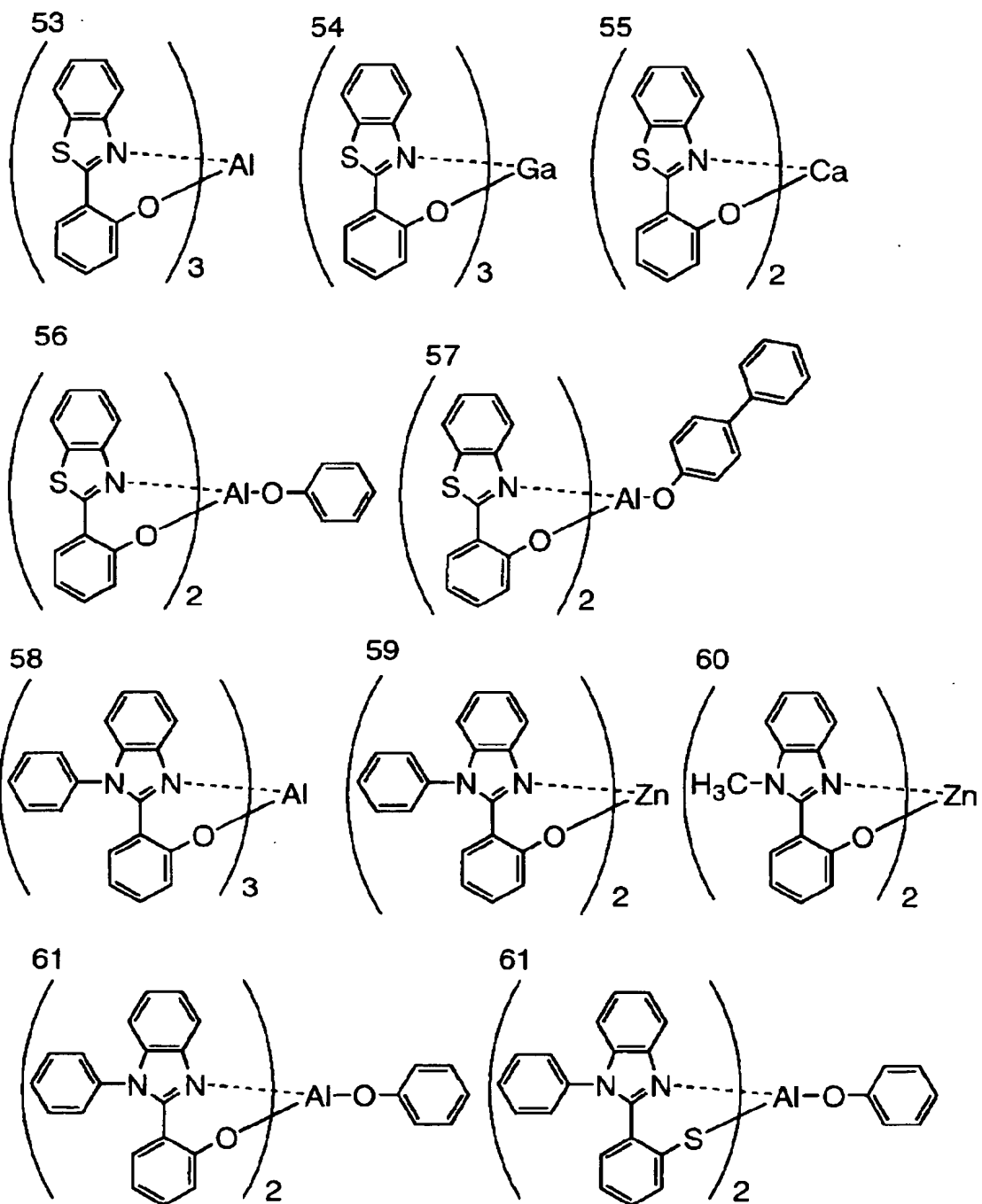
【0051】

【化 2 1】



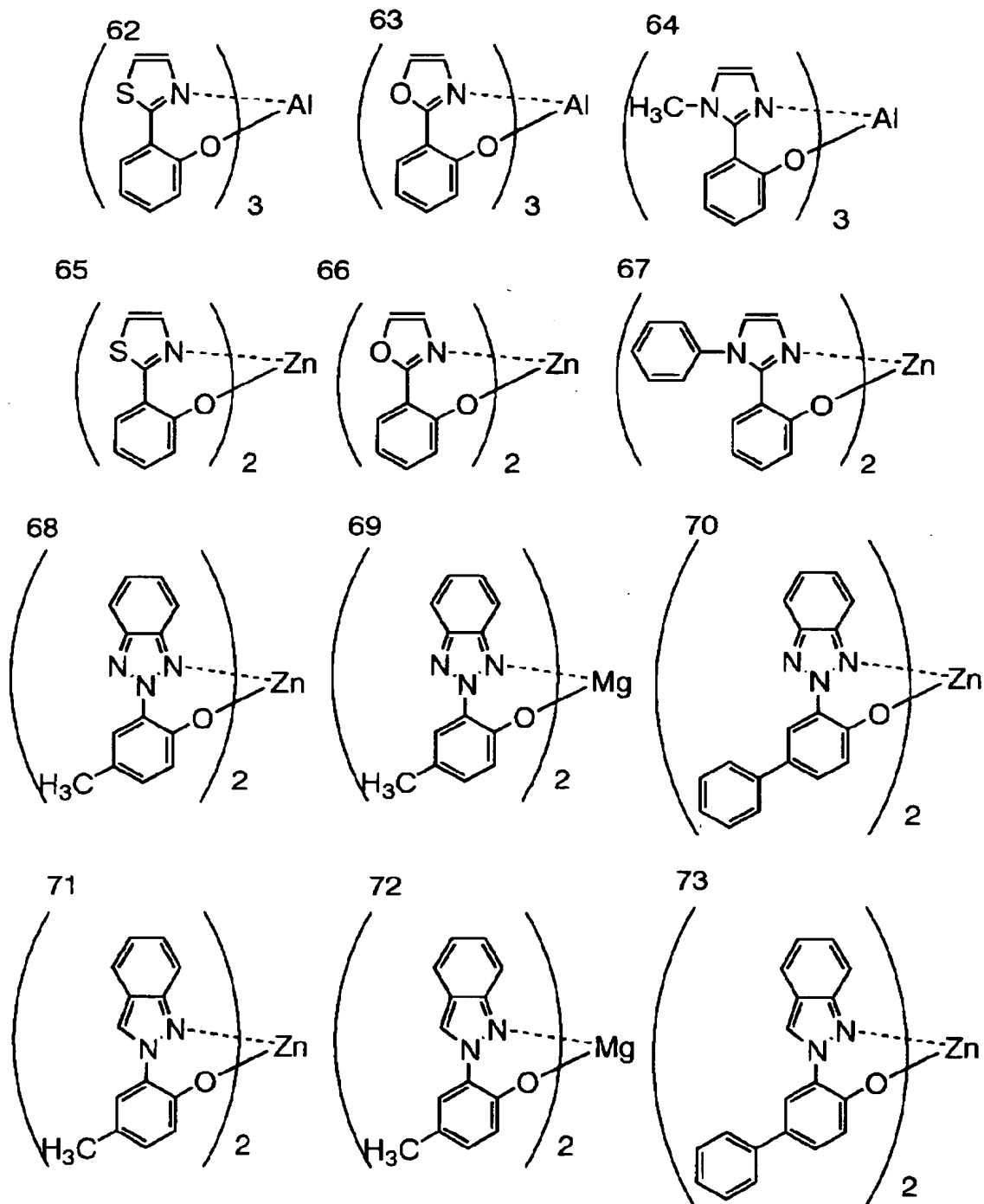
【0052】

【化 2 2】



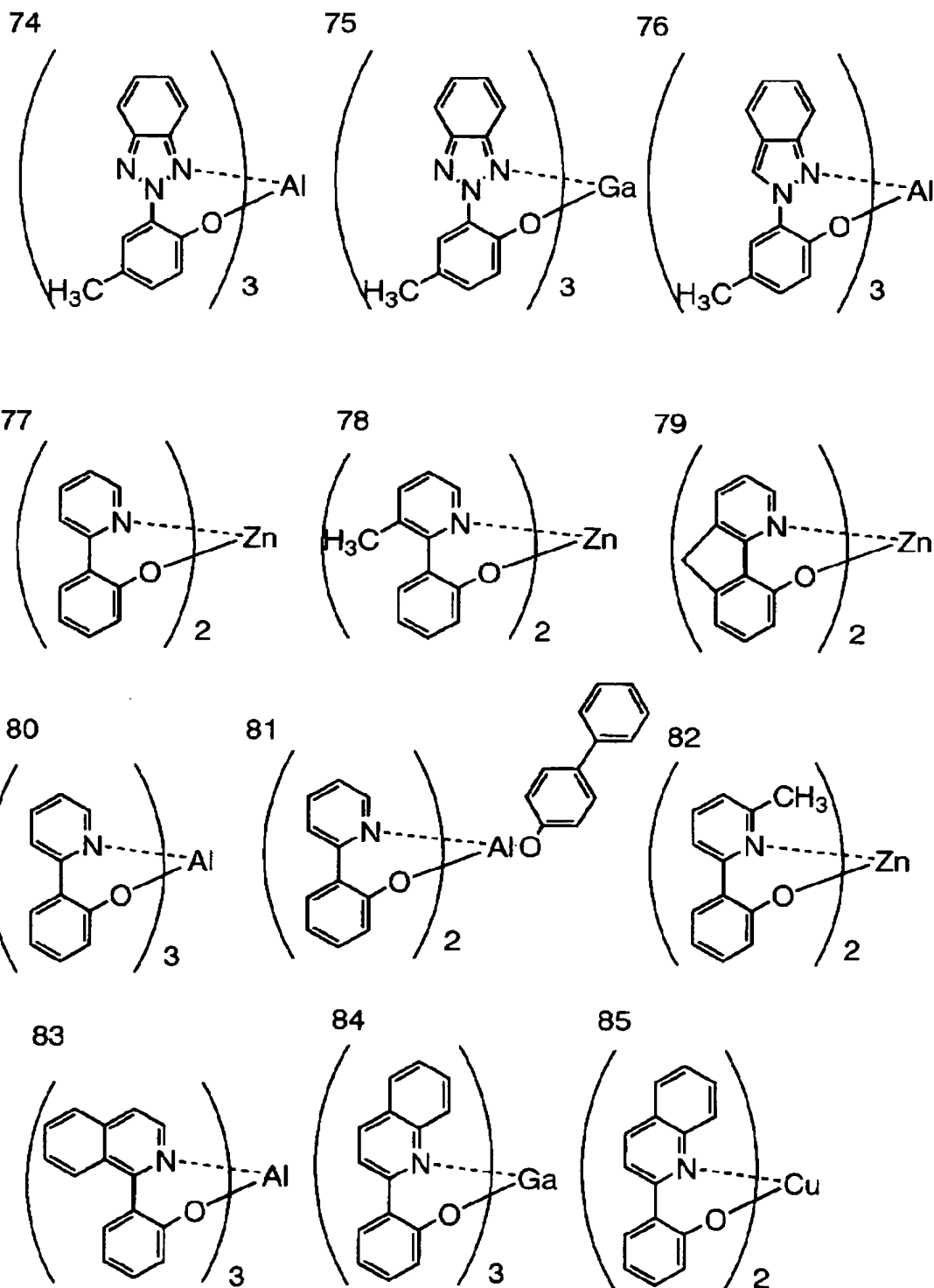
【0053】

【化 23】



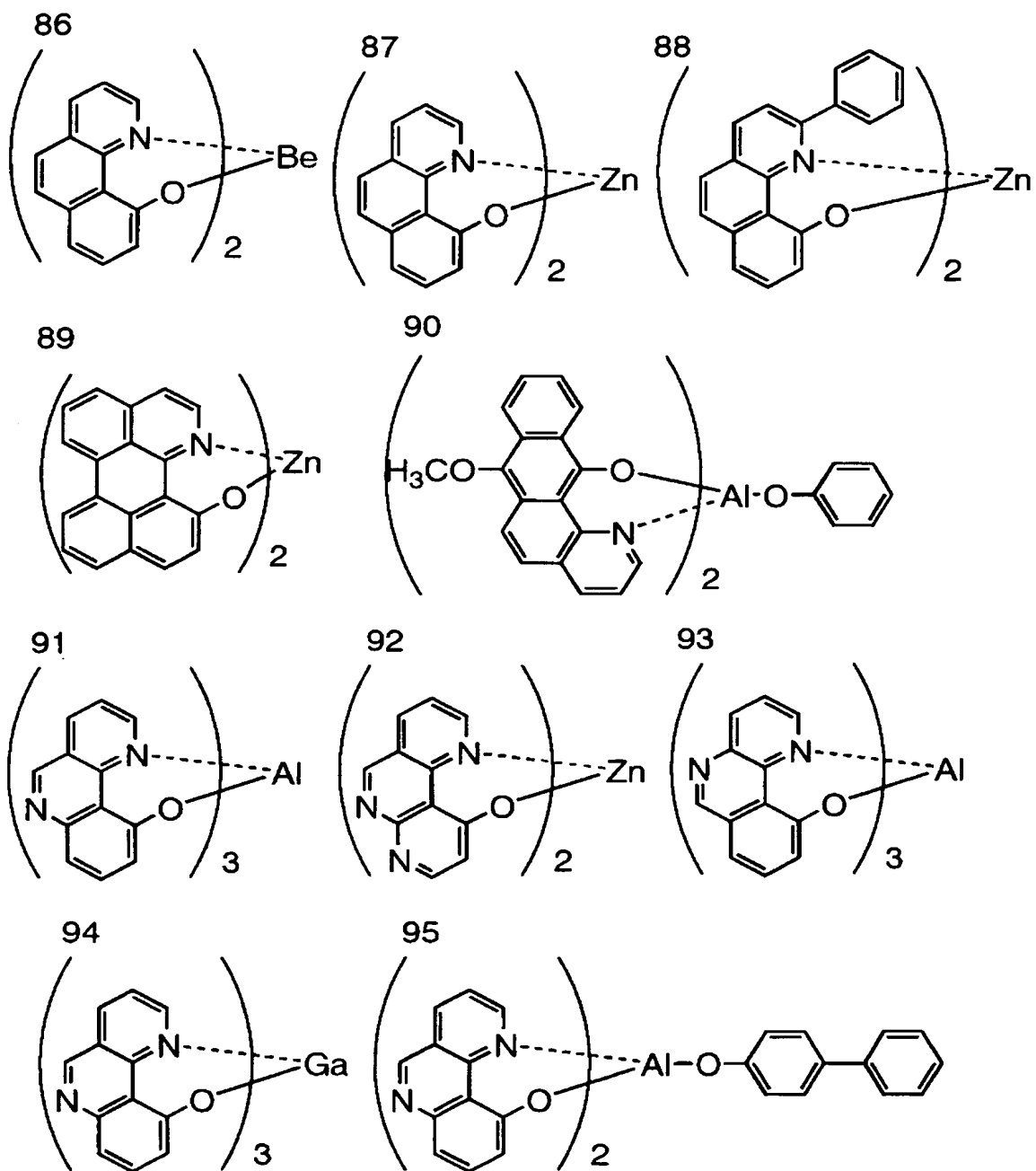
【0054】

【化 2 4】



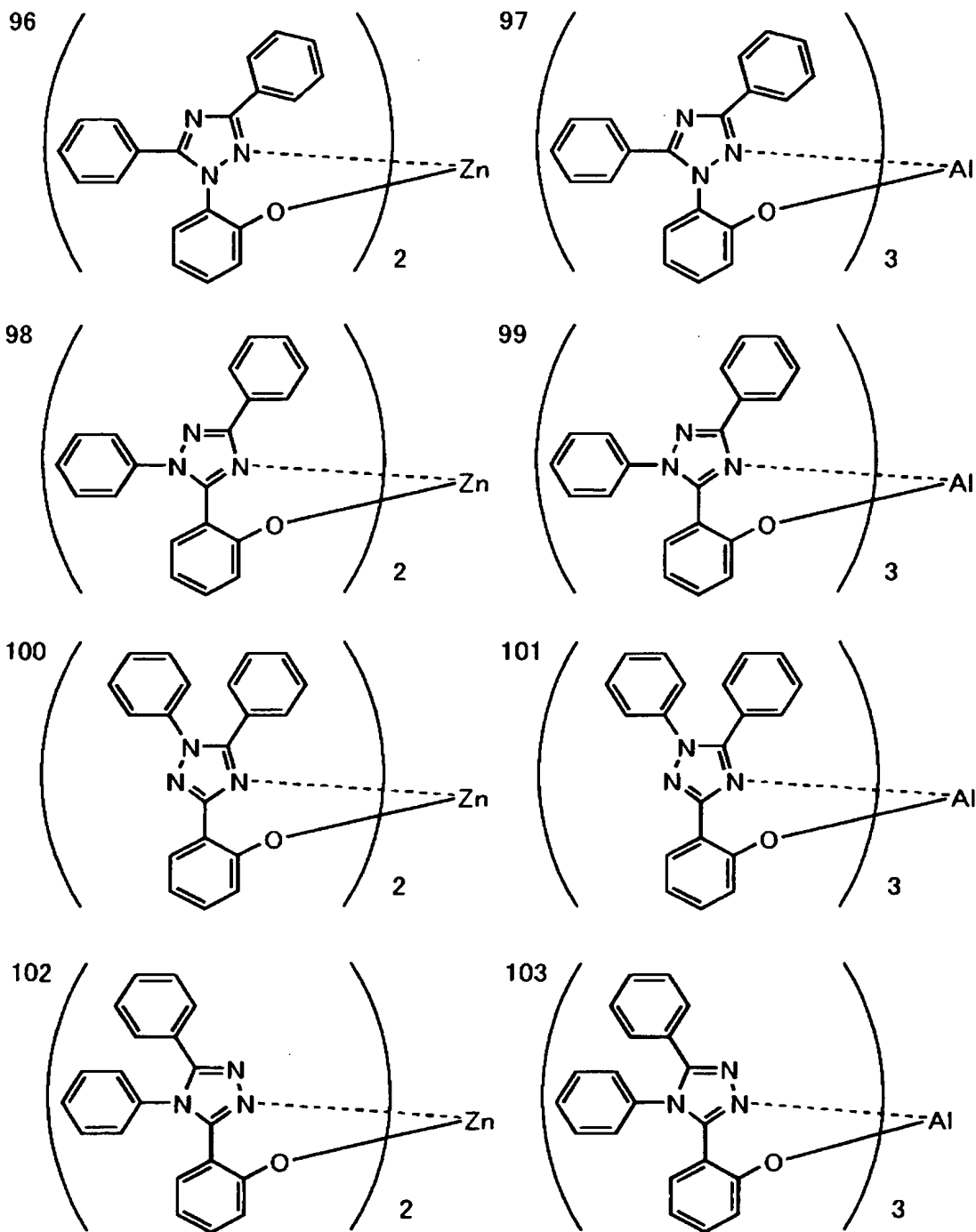
【0055】

【化 25】



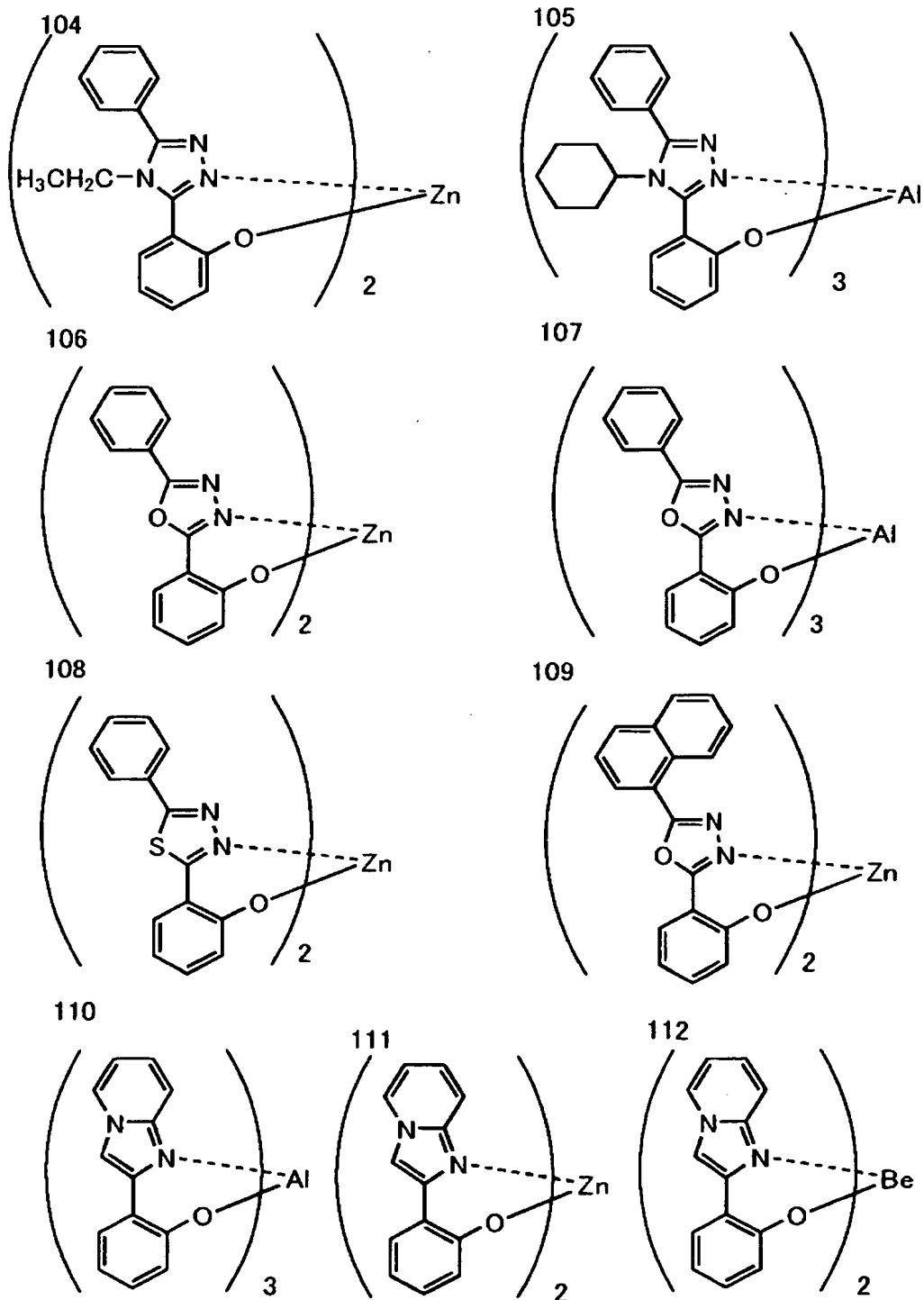
【0056】

【化 26】



【0057】

【化 27】



【0058】

本発明の発光素子は、りん光発光材料を発光層に含み、ゲスト材料として用い

られて、実質的に励起三重項状態からの発光を利用する。励起三重項状態からの発光はりん光発光と同義である。発光層はりん光材料と金属錯体のみから構成されるのが好ましい。以下、りん光を発する材料を「りん光材料」と称する。

【0059】

本発明のりん光材料は、本発明に用いられるりん光材料は特に限定されないが、遷移金属錯体が好ましい。遷移金属錯体の中心金属は特に限定されないが、好ましくはイリジウム、白金、レニウム、又はルテニウムであり、より好ましくはイリジウム又は白金であり、特に好ましくはイリジウムである。遷移金属錯体の中でも、オルトメタル化錯体が好ましく、オルトカルボメタル化錯体がより好ましい。オルトメタル化錯体 (Orthometalated Complex) とは、山本明夫著「有機金属 基礎と応用」、150頁及び232頁、裳華房社(1982年)やH. Yersin著「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compound」、71～77頁及び135～146頁、Springer-Verlag社(1987年)等に記載されている化合物群の総称である。

【0060】

りん光材料は一種単独又は二種以上を併用しても良く、ホスト材料もまた一種単独又は二種以上を併用しても良い。りん光材料の発光層中における含有率は、特に限定されないが、好ましくは0.01%～50質量%であり、より好ましくは0.1%～40質量%であり、特に好ましくは1%～30質量%である。上記りん光材料は、20℃以上のりん光量子収率が70%以上であるのが好ましく、より好ましくは80%以上であり、さらに好ましくは85%以上である。

【0061】

上記りん光発光材料としては、例えばUS 6303231 B1、US 6097147、WO 00/57676、WO 00/70655、WO 01/08230、WO 01/39234 A2、WO 01/41512 A1、WO 02/02714 A2、WO 02/15645 A1、特開2001-247859、EP 1211257、特開2002-226495、特開2002-234894、特開2001-247859、特開2001-298470、特開2002-173674、特開2002-203678、特開200

2-203679等の特許文献や、Nature、395巻、151頁（1998年）、Applied Physics Letters、75巻、4頁（1999年）、Polymer Preprints、41巻、770頁（2000年）、Journal of American Chemical Society、123巻、4304頁（2001年）、Applied Physics Letters、79巻、2082頁（1999年）等の非特許文献に記載されているものが好適に利用できる。

【0062】

本発明の有機EL素子の形態は、一般式（E-I）で表される電子輸送材料を電子輸送層に用いることを特徴とする。一般式（E-I）で表される化合物及びこの化合物の下位概念に相当する化合物の電子輸送層中における含有率は、特に限定されないが、好ましくは50%～100質量%であり、より好ましくは75%～100質量%であり、特に好ましくは90%～100質量%である。

【0063】

一般式（E-I）中、Aは二つ以上の芳香族ヘテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一又は異なってもよい。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。

【0064】

Aは二つ以上の芳香族ヘテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一又は異なってもよい。Aで表されるヘテロ環基として好ましくは5員環又は6員環の芳香族ヘテロ環が縮合した縮合したものであり、より好ましくは2ないし6個、更に好ましくは2ないし3個、特に好ましくは2個の芳香族ヘテロ環が縮合したものである。この場合のヘテロ原子として好ましくは、N、O、S、Se、Te原子であり、より好ましくはN、O、S原子であり、更に好ましくはN原子である。

【0065】

Aで表されるヘテロ環基を構成する芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばフラン、チオフェン、ピラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール

ル、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはイミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、ルであり、より好ましくはイミダゾール、チアゾール、オキサゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンである。

【0066】

Aで表される縮合環の具体例としては、例えばインドリジン、プリン、プテリジン、カルボリン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、ピラゾロイミダゾール、ピラゾロトリアゾール、ピラゾロピリミジン、ピラゾロトリアジン、トリアゾロピリジン、テトラザインデン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、イミダゾイミダゾール、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、イミダゾピリミジン、イミダゾピリダジン、オキサゾロピリジン、オキサゾロピラジン、オキサゾロピリミジン、オキサゾロピリダジン、チアゾロピリジン、チアゾロピラジン、チアゾロピリミジン、チアゾロピリダジンなどが挙げられ、好ましくはイミダゾピリジン、イミダゾピラジン、イミダゾピリミジン、イミダゾピリダジン、オキサゾロピリジン、オキサゾロピラジン、オキサゾロピリミジン、オキサゾロピリダジン、チアゾロピリジン、チアゾロピラジン、チアゾロピリミジン、チアゾロピリダジンであり、更に好ましくはイミダゾピリジン、オキサゾロピリジン、チアゾロピリジンであり、特に好ましくはイミダゾピリジンである。

【0067】

Aで表されるヘテロ環基は更に他の環と縮合してもよく、また置換基を有してもよい。Aで表されるヘテロ環基の置換基としては、置換基群Bが挙げられる。

【0068】

(置換基群B)

アルキル基 (好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメチル、エチル、i s o -プロピル、t e r t -ブチル、n -オクチル、n -デシル、n -ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。) 、アルケニル基 (好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは

炭素数 2～10 であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数 2～30、より好ましくは炭素数 2～20、特に好ましくは炭素数 2～10 であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数 6～30、より好ましくは炭素数 6～20、特に好ましくは炭素数 6～12 であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられる。)、

【0069】

アミノ基(好ましくは炭素数 0～30、より好ましくは炭素数 0～20、特に好ましくは炭素数 0～10 であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～10 であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、アリールオキシ基(好ましくは炭素数 6～30、より好ましくは炭素数 6～20、特に好ましくは炭素数 6～12 であり、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。)、アシル基(好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 2～12 であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数 2～30、より好ましくは炭素数 2～20、

【0070】

特に好ましくは炭素数 2～12 であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニル基(好ましくは炭素数 7～30、より好ましくは炭素数 7～20、特に好ましくは炭素数 7～12 であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基(好ましくは炭素数 2～30、より好ましくは炭素数 2～20、特に好ましくは炭素数 2～10 であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数 2～30、より好ましくは炭素数 2～20、特に好ましくは炭素数 2～10 であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭

素数 2～30、より好ましくは炭素数 2～20、特に好ましくは炭素数 2～12 であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニルアミノ基 (好ましくは炭素数 7～30、より好ましくは炭素数 7～20、特に好ましくは炭素数 7～12 であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基 (好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基 (好ましくは炭素数 0～30、より好ましくは炭素数 0～20、特に好ましくは炭素数 0～12 であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、

【0071】

ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基 (好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基 (好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基 (好ましくは炭素数 6～30、より好ましくは炭素数 6～20、特に好ましくは炭素数 6～12 であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基 (好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基 (好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基 (好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基 (好ましくは炭素数 1～30、より好ましくは炭素数 1～20、特に好ましくは炭素数 1～12 であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲ

ン原子（例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子）、

【0072】

シアノ基、スルホ基、カルボキシル基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリルなどが挙げられる。）、シリル基（好ましくは炭素数3～40、より好ましくは炭素数3～30、特に好ましくは炭素数3～24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。）などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。また置換基が二つ以上ある場合は、同じでも異なってもよい。また、可能な場合には連結して環を形成してもよい。

【0073】

Aで表される置換基として好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。

【0074】

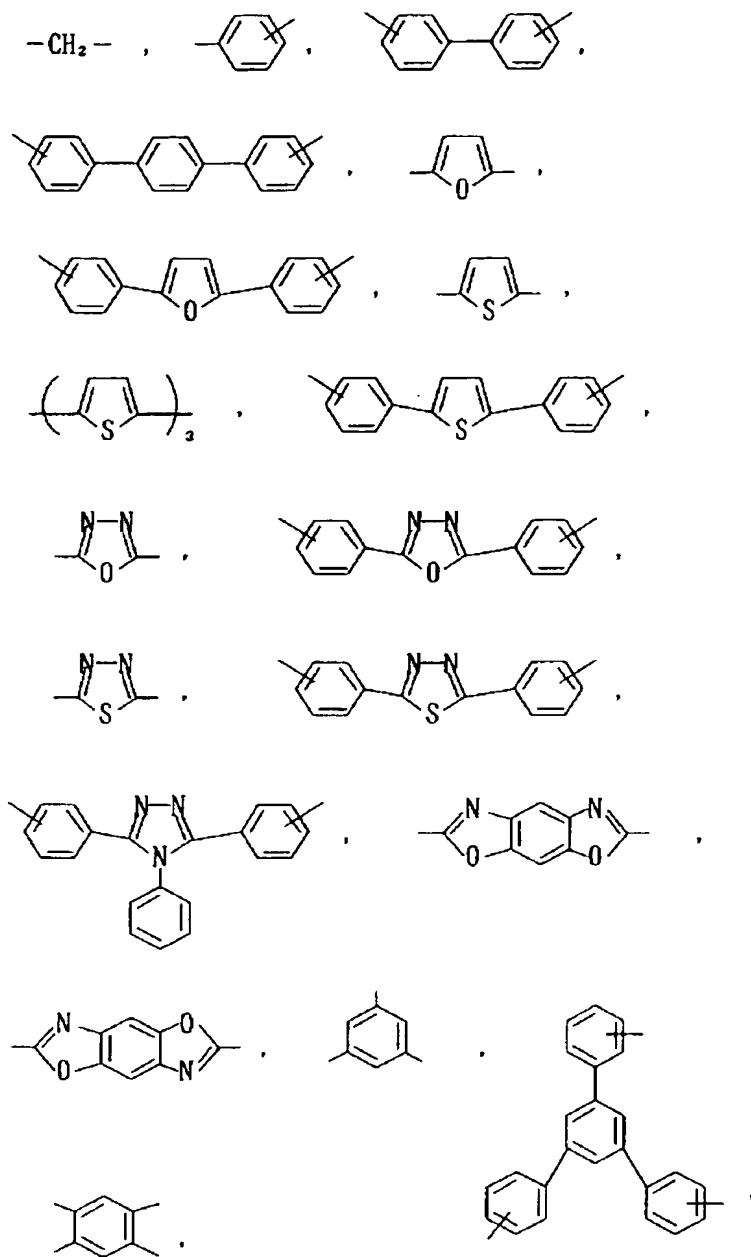
mは2以上の整数を表し、好ましくは2ないし8、より好ましくは2ないし6、更に好ましくは2ないし4であり、特に好ましくは2又は3であり、最も好ましくは3である。

【0075】

Lは連結基を表す。Lで表される連結基として好ましくは、単結合、C、N、O、S、Si、Geなどで形成される連結基であり、より好ましくは単結合、アルキレン、アルケニレン、アルキニレン、アリーレン、二価のヘテロ環（好ましくは芳香族ヘテロ環であり、より好ましくはアゾール、チオフェン、フラン環から形成される芳香族ヘテロ環などである。）及びNとこれらの組合わせから成る基であり、更に好ましくはアリーレン、二価の芳香族ヘテロ環及びNとこれらの組合わせから成る基である。Lで表される連結基の具体例として単結合の他に以下のものが挙げられる。

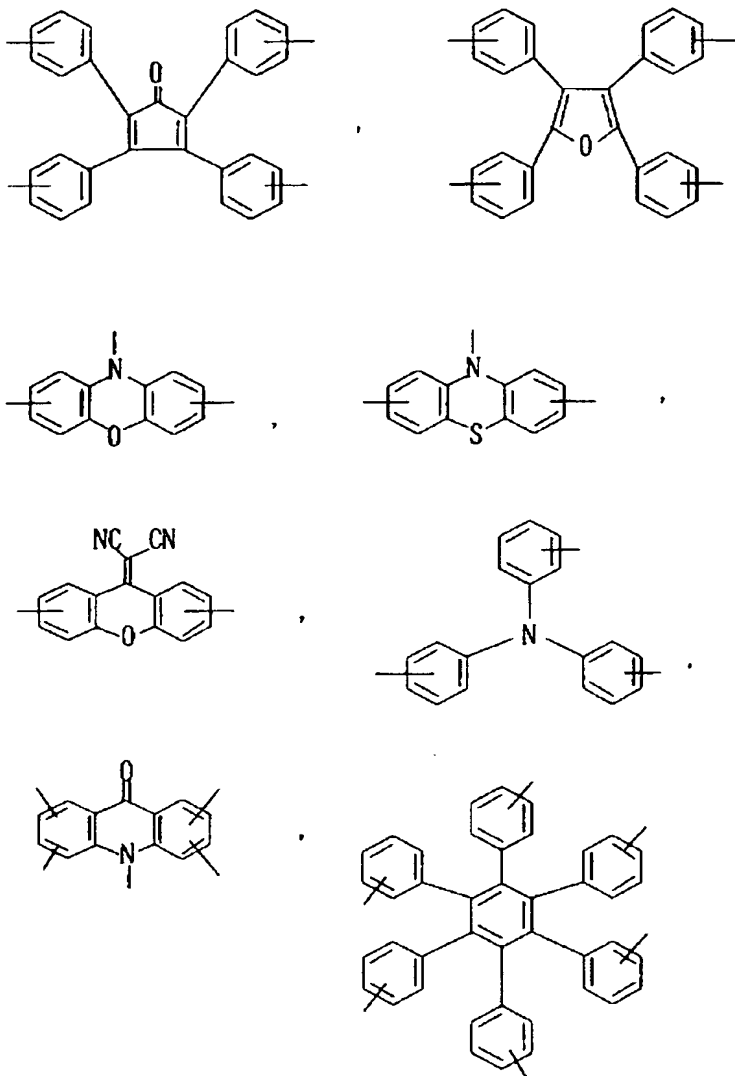
【0076】

【化 28】



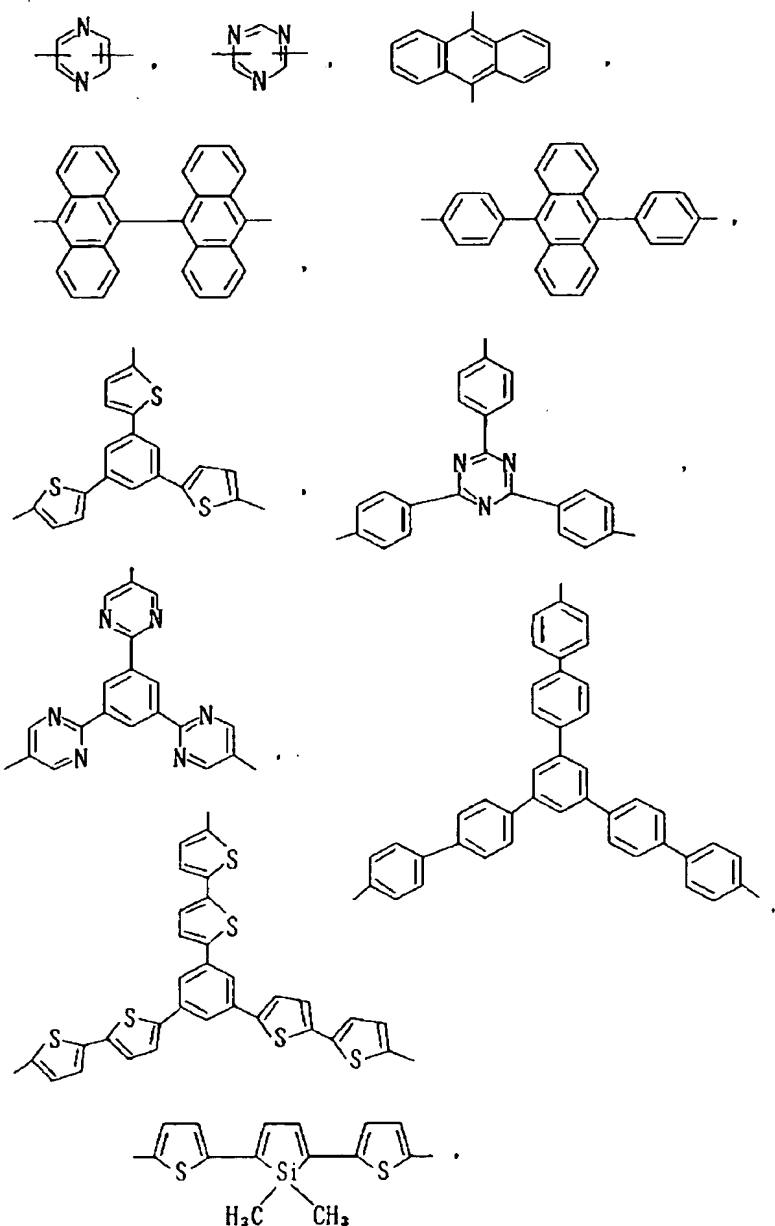
【0077】

【化 30】



【0079】

【化3 1】



【0080】

Lで表される連結基は置換基を有してもよく、置換基としては例えばAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用できる。Lの置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、

アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。

【0081】

一般式 (E-I) で表される化合物のうち、好ましくは一般式 (E-II) で表される化合物である。一般式 (E-II) 式中、X は O、S、Se、Te 又は N-R を表す。R は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基又はヘテロ環基を表す。Q² は芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。m は 2 以上の整数を表す。L は連結基を表す。

【0082】

m、L は、各々一般式 (E-I) におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。X は O、S、Se、Te 又は N-R を表す。R は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基又はヘテロ環基を表す。Q² は芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。

【0083】

R で表される脂肪族炭化水素基として好ましくは、アルキル基（好ましくは炭素数 1～20、より好ましくは炭素数 1～12、特に好ましくは炭素数 1～8 であり、例えばメチル、エチル、i s o-プロピル、t e r t-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数 2～20、より好ましくは炭素数 2～12、特に好ましくは炭素数 2～8 であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数 2～20、より好ましくは炭素数 2～12、特に好ましくは炭素数 2～8 であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。）であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基である。

【0084】

R で表されるアリール基として好ましくは炭素数 6～30、より好ましくは炭素数 6～20、特に好ましくは炭素数 6～12 であり、例えばフェニル、4-メチルフェニル、4-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1-ナフチル、2-ナフチルなどが挙げられる。

【0085】

Rで表されるヘテロ環基は、単環又は縮環のヘテロ環基（好ましくは炭素数1～20、好ましくは炭素数1～12、更に好ましくは炭素数2～10のヘテロ環基）であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。

【0086】

Rで表されるヘテロ環基の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピロール、フラン、チオフェン、イミダゾリン、イミダゾール、ベンズイミダゾール、ナフトイミダゾール、チアゾリジン、チアゾール、ベンズチアゾール、ナフトチアゾール、イソチアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、ベンズオキサゾール、ナフトオキサゾール、イソオキサゾール、セレナゾール、ベンズセレナゾール、ナフトセレナゾール、ピリジン、キノリン、イソキノリン、インドール、インドレニン、ピラゾール、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、インダゾール、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、フェナントリジン、プテリジン、フェナントロリン、テトラザインデンなどが挙げられ、好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンである。

【0087】

Rで表される脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基は置換基を有してもよく、置換基としては一般式（E-I）におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。

【0088】

Rとして好ましくは、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアリール基である。

【0089】

Xとして好ましくはO、S、N-Rであり、より好ましくはO、N-Rであり、

更に好ましくはN-Rであり、特に好ましくはN-Ar (Arはアリール基であり、より好ましくは炭素数6~30、更に好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12のアリール基である。)である。

【0090】

Q²は芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。Q²で形成される芳香族ヘテロ環として好ましくは5又は6員の芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは5又は6員の含窒素芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは6員の含窒素芳香族ヘテロ環である。

【0091】

Q²で形成される芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばフラン、チオフェン、ピラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジン、ピラジンであり、更に好ましくはピリジンである。Q²で形成される芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基としては一般式(E-I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。

【0092】

一般式(E-I)で表される化合物のうち、より好ましくは一般式(E-III)で表される化合物である。一般式(E-III)式中、XはO、S、Se、Te又はN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基又はヘテロ環基を表す。Q³は含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

【0093】

一般式(E-III)中、m、Lは、各々一般式(E-I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Xは一般式(E-III)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q³は含窒素芳香族ヘテロ環を

形成するに必要な原子群を表す。

【0094】

Q^3 で形成される含窒素芳香族ヘテロ環として好ましくは5又は6員の含窒素芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは6員の含窒素芳香族ヘテロ環である。

【0095】

Q^3 で形成される含窒素芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジン、ピラジンであり、更に好ましくはピリジンである。

【0096】

Q^3 で形成される芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基としては一般式(E-I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基が適用でき、また好ましい置換基も同様である。

【0097】

一般式(E-I)で表される化合物のうち、より好ましくは一般式(E-IV)で表される化合物である。一般式(E-IV)式中、 X^4 はO、S又はN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基又はヘテロ環基を表す。 Q^4 は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2～8の整数を表す。Lは連結基を表す。)

【0098】

Lは一般式(E-I)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 X^4 はO、S又はN-Rを表す。Rは一般式(E-II)におけるそれと同義であり、好ましい範囲も同様である。 Q^4 は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 Q^4 で形成される6員の含窒素芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジンなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジン、ピラジンであり、更に好ましくはピリジンで

ある。nは2～8の整数を表し、好ましくは2～6、より好ましくは2～4であり、更に好ましくは2～3であり、特に好ましくは3である。

【0099】

一般式(E-I)で表される化合物のうち、より好ましくは一般式(E-V)で表される化合物である。一般式(E-V)中、Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基又はヘテロ環基を表す。Q⁵は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2～8の整数を表す。Lは連結基を表す。)

【0100】

Lは一般式(E-I)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Rは一般式(E-II)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q⁵は一般式(E-IV)におけるQ⁴と同義であり、また好ましい範囲も同様である。nは一般式(E-IV)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0101】

一般式(E-I)で表される化合物のうち、さらに好ましくは一般式(E-VI)で表される化合物である。一般式(E-VI)式中、Q⁶¹、Q⁶²及びQ⁶³は、各々6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。R⁶¹、R⁶²及びR⁶³は、各々水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基又はヘテロ環基を表す。L¹、L²及びL³は、各々連結基を表す。Yは窒素原子又は1, 3, 5-ベンゼントリイル基を表す。)

【0102】

R⁶¹、R⁶²及びR⁶³は、各々一般式(E-III)におけるRと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q⁶¹、Q⁶²及びQ⁶³は、各々一般式(E-IIII)におけるQ³と同義であり、また好ましい範囲も同様である。L¹、L²及びL³は、各々一般式(E-I)におけるLと同義である。

【0103】

L¹、L²及びL³として好ましくは、単結合、アリーレン、二価の芳香族ヘテロ環及びこれらの組合わせから成る連結基であり、より好ましくは単結合、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、ピリジン、ピラジン、チオフェン、フラン、オ

キサゾール、チアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、トリアゾール及びこれらの組合わせから成る連結基であり、更に好ましくは単結合、ベンゼン、チオフエン及びこれらの組合わせから成る連結基であり、特に好ましくは単結合、ベンゼン及びこれらの組合わせから成る連結基であり、最も好ましくは単結合である。 L^1 、 L^2 及び L^3 は置換基を有してもよく、置換基としては一般式(E-I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用できる。

【0104】

Yは窒素原子又は1, 3, 5-ベンゼントリイル基を表すが、後者は2, 4, 6位に置換基を有してもよく、置換基としては例えばアルキル基、アリール基、ハロゲン原子などが挙げられる。Yとして好ましくは窒素原子又は無置換1, 3, 5-ベンゼントリイル基であり、より好ましくは無置換1, 3, 5-ベンゼントリイル基である。

【0105】

一般式(E-I)で表される化合物のうち、さらに好ましくは一般式(E-VI)で表される化合物である。一般式(E-VII)中、 R^{71} 、 R^{72} 及び R^{73} は、各々水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基又はヘテロ環基を表す。 R^{74} 、 R^{75} 及び R^{76} は、各々置換基を表す。 p^1 、 p^2 及び p^3 は、各々0～3の整数を表す。)

【0106】

R^{71} 、 R^{72} 及び R^{73} は、各々一般式(E-II)におけるRと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 R^{74} 、 R^{75} 及び R^{76} は、各々置換基を表し、置換基としては一般式(E-I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。また可能な場合、置換基同士が連結して環を形成してもよい。 p^1 、 p^2 及び p^3 は、各々0～3の整数を表し、好ましくは0～2、より好ましくは0～1、更に好ましくは0である。

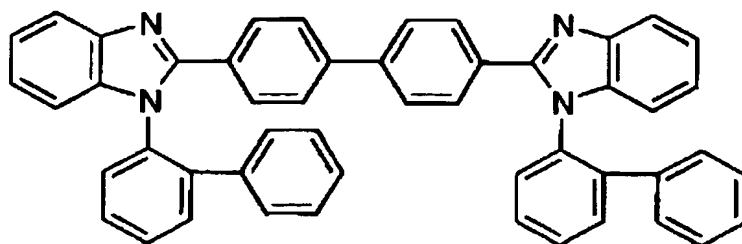
【0107】

以下に本発明の一般式(E-I)で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

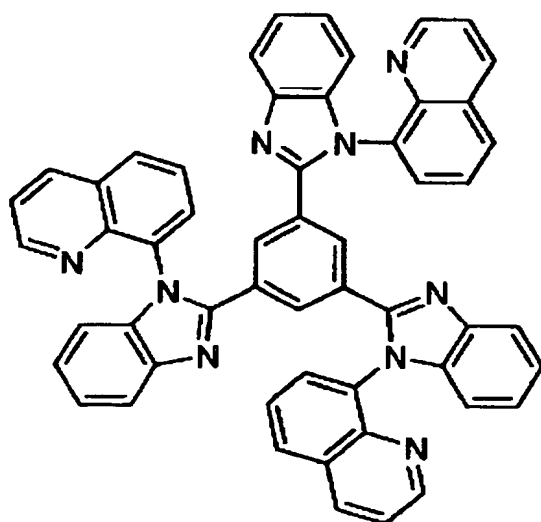
【0108】

【化32】

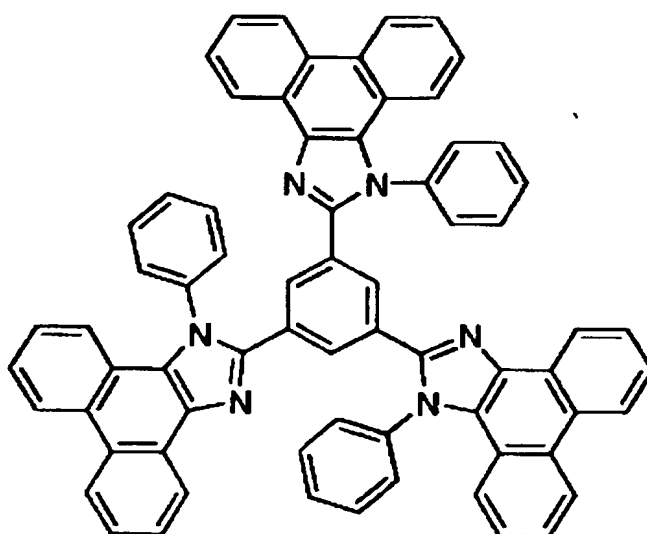
E-1



E-2



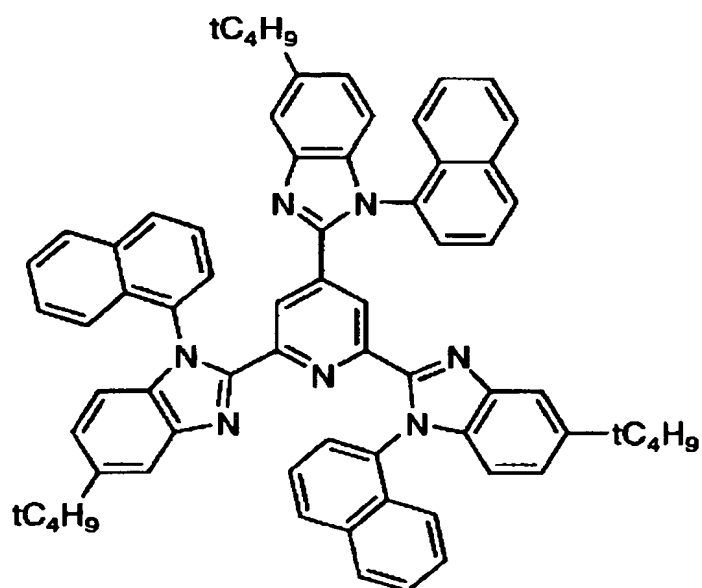
E-3



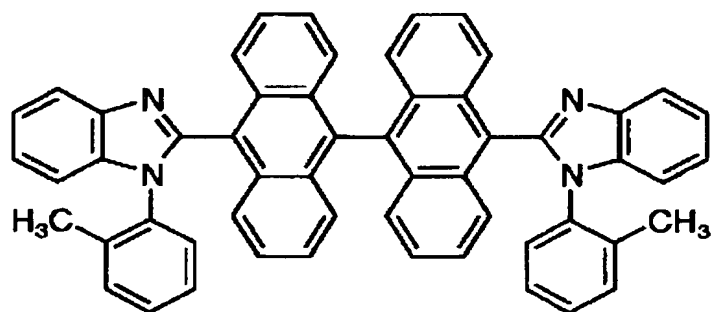
【0109】

【化 3 3】

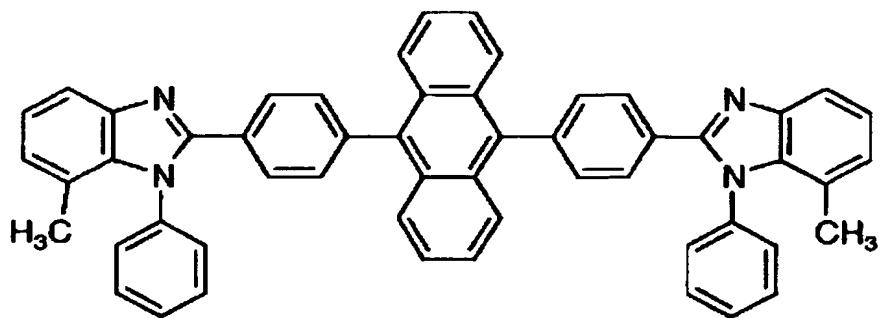
E-4



E-5



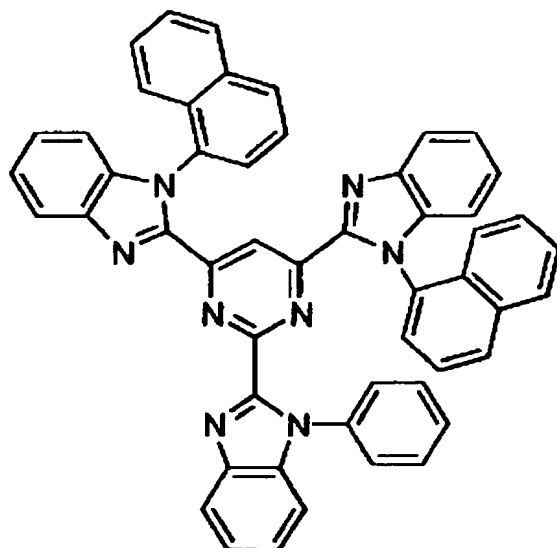
E-6



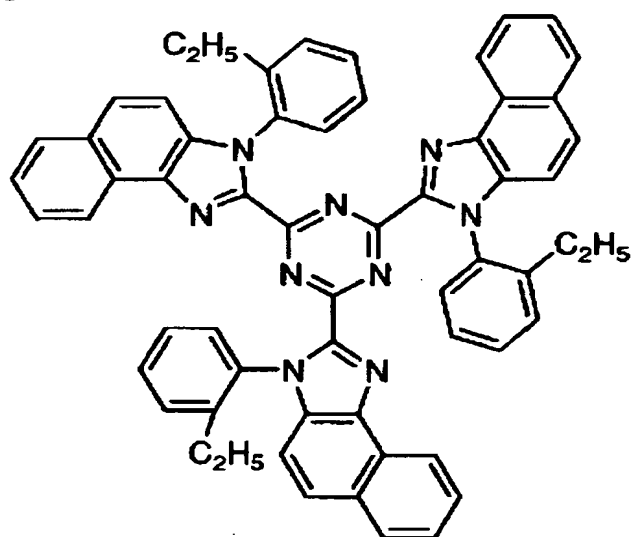
【 0 1 1 0 】

【化 3 4】

E-7



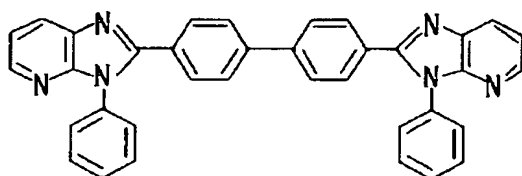
E-8



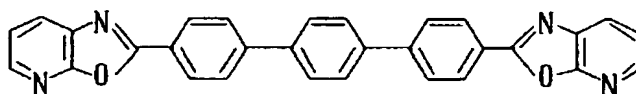
【0 1 1 1】

【化 35】

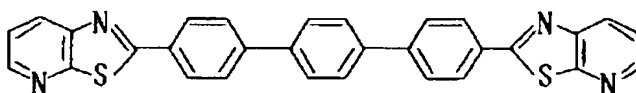
E-9



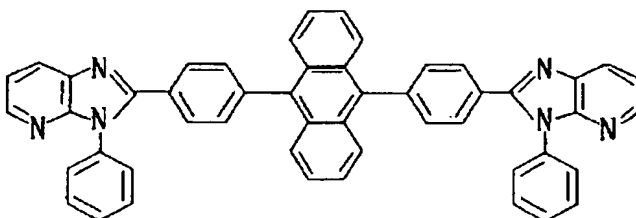
E-10



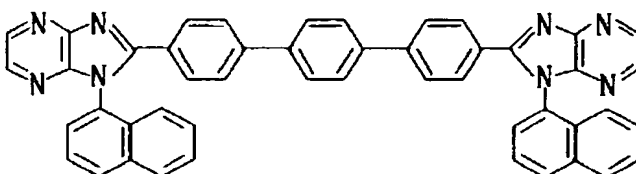
E-11



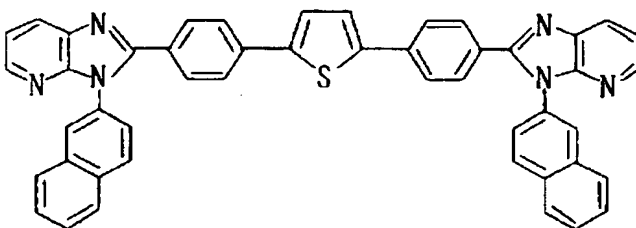
E-12



E-13



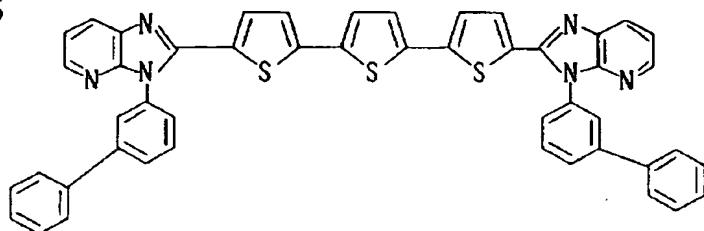
E-14



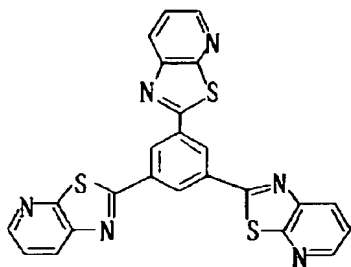
【0112】

【化 36】

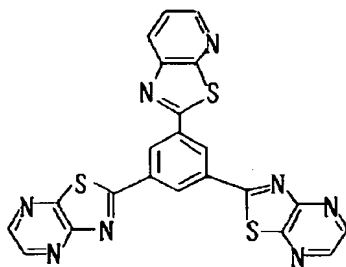
E-15



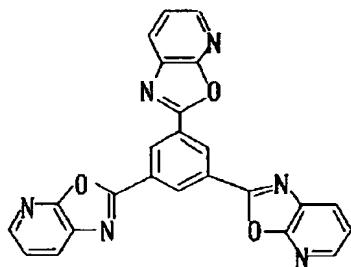
E-16



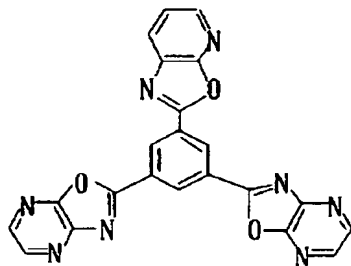
E-17



E-18



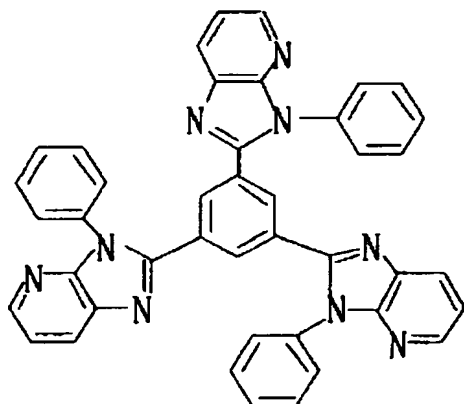
E-19



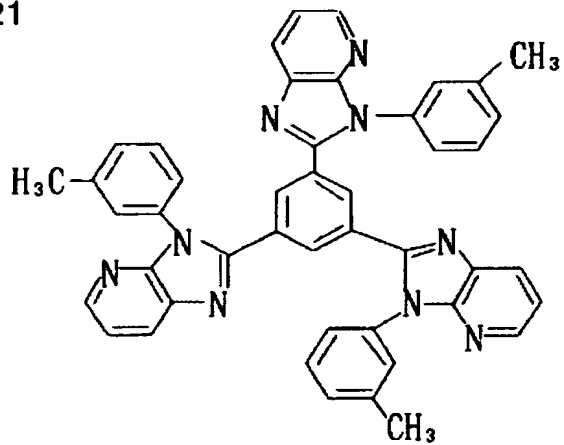
【0113】

【化 37】

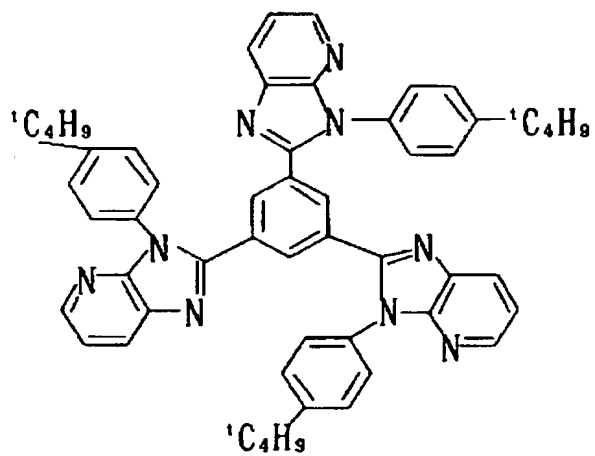
E-20



E-21



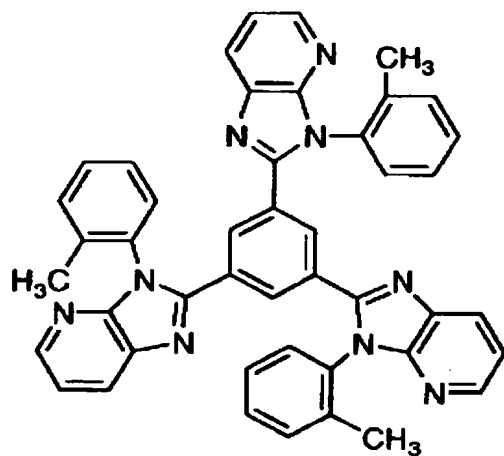
E-22



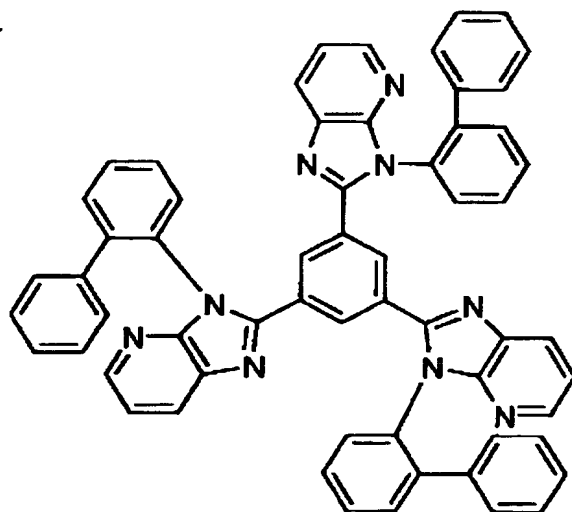
【0114】

【化 38】

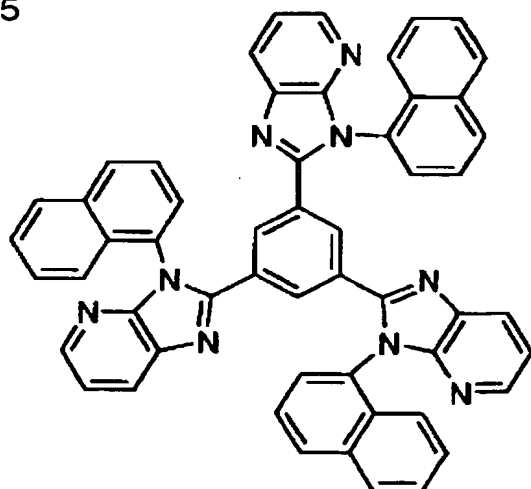
E-23



E-24



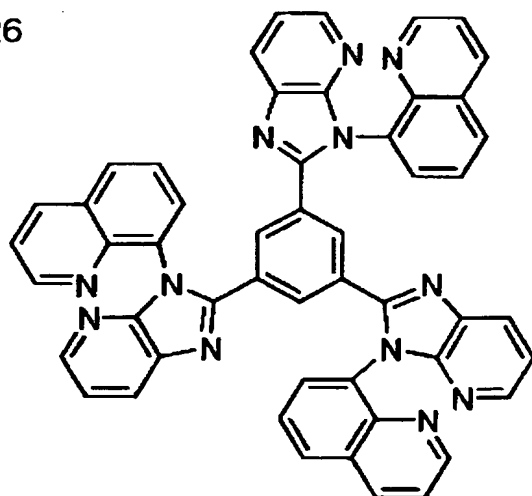
E-25



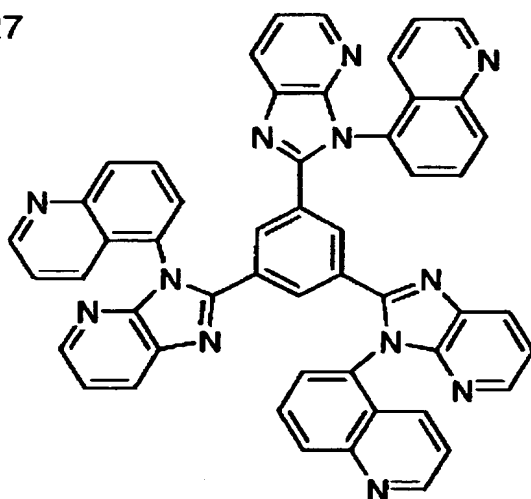
【0115】

【化 39】

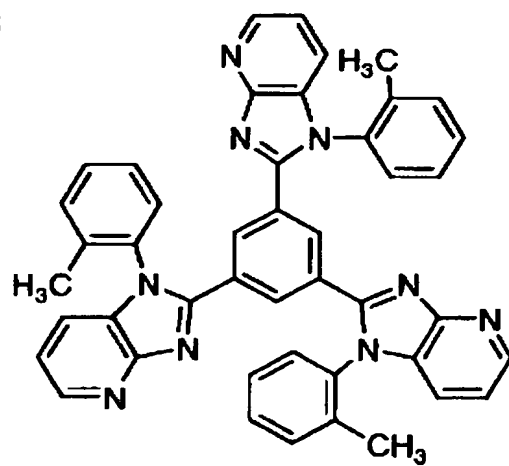
E-26



E-27



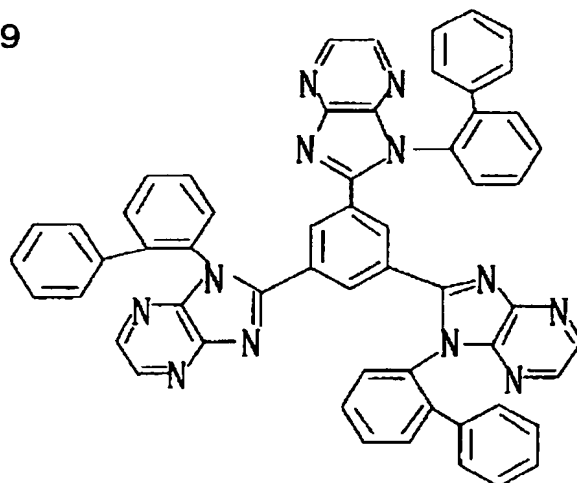
E-28



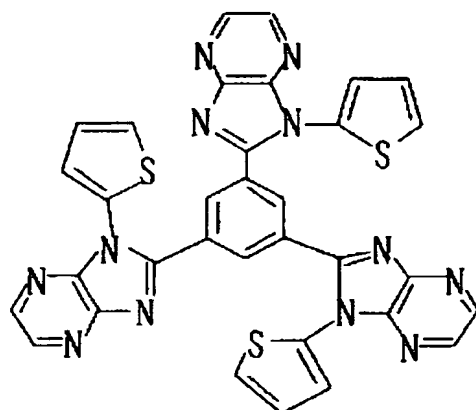
【0116】

【化 40】

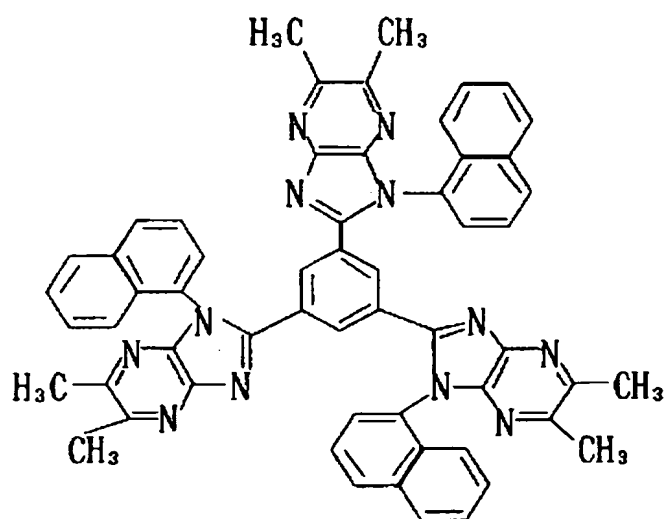
E-29



E-30



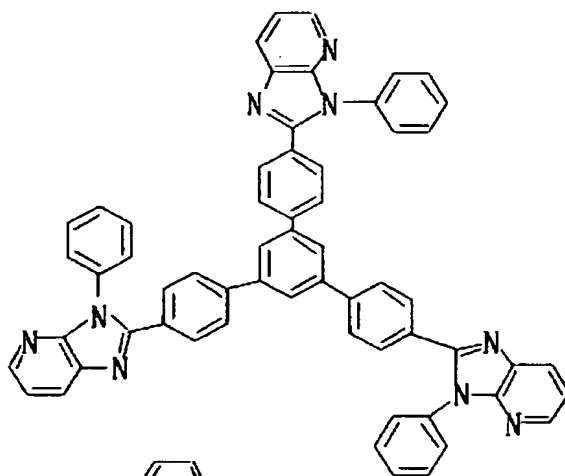
E-31



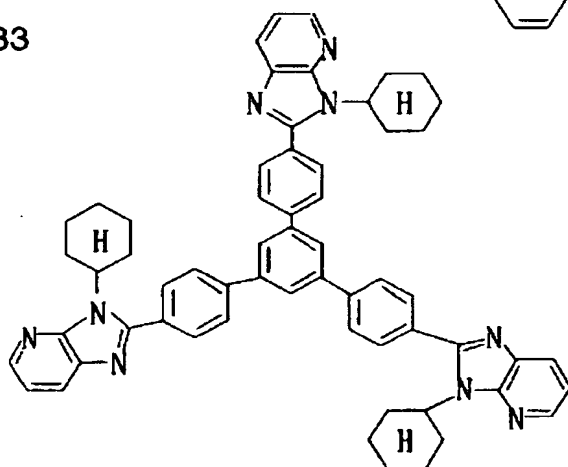
【0117】

【化41】

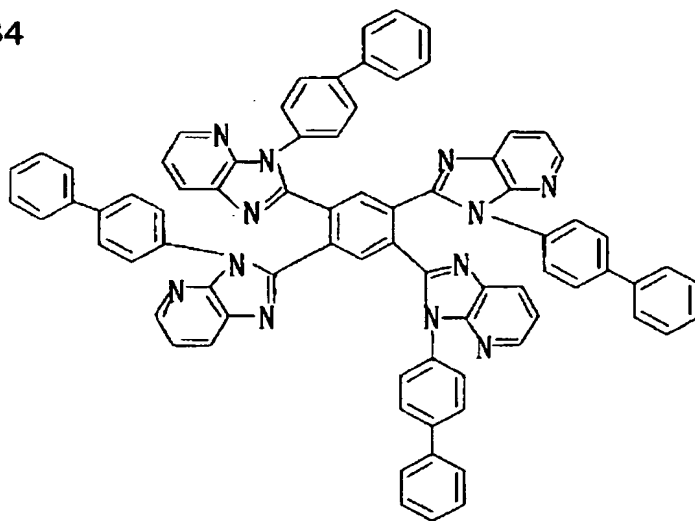
E-32



E-33



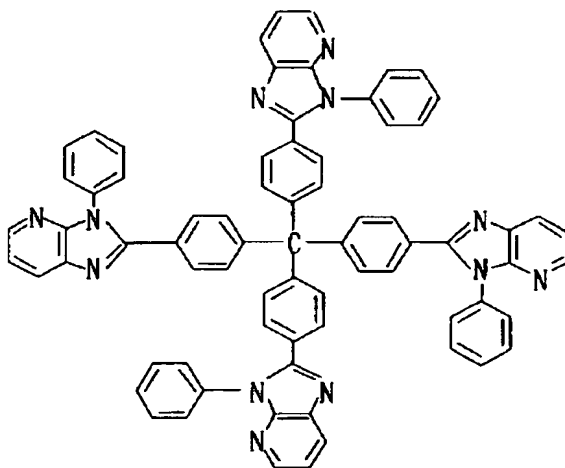
E-34



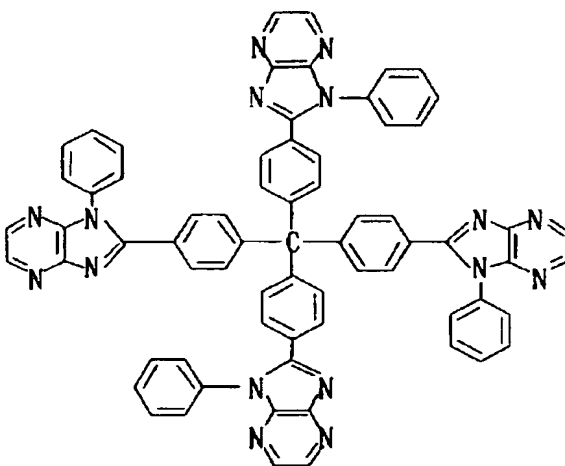
【0118】

【化 4 2】

E-35



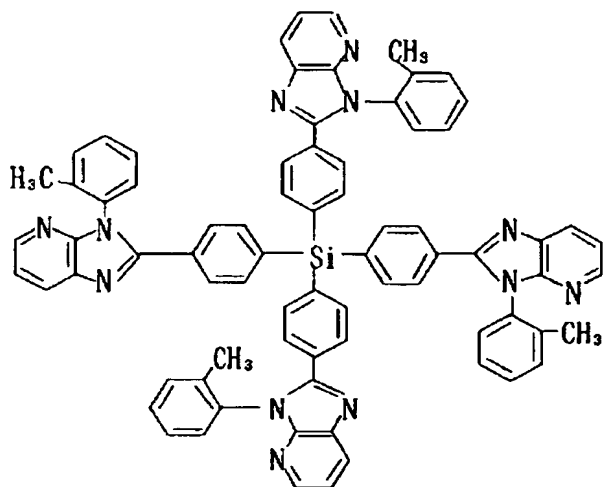
E-36



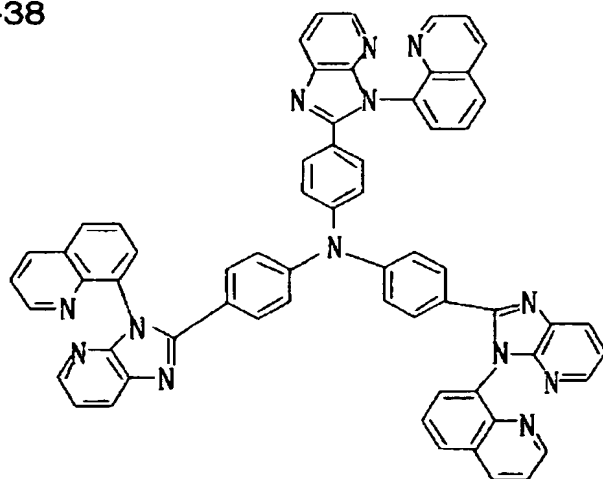
【0 1 1 9】

【化 4 3】

E-37



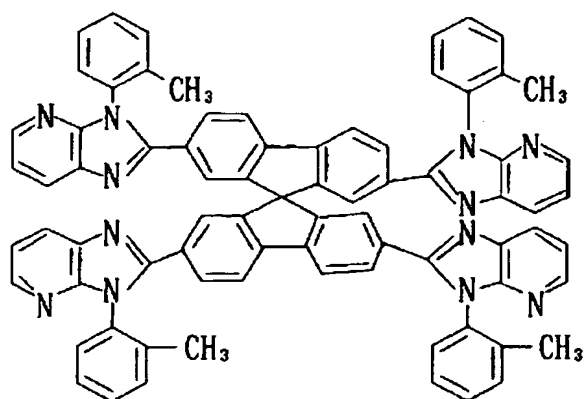
E-38



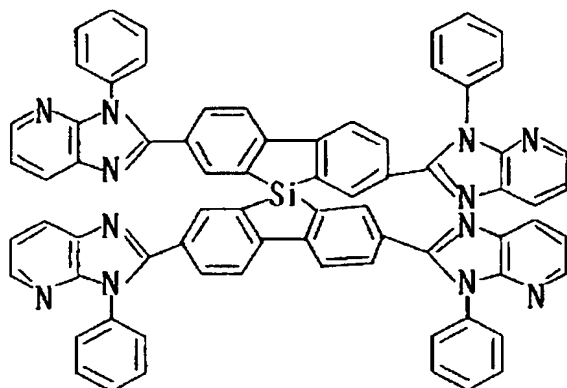
【0120】

【化 4 4】

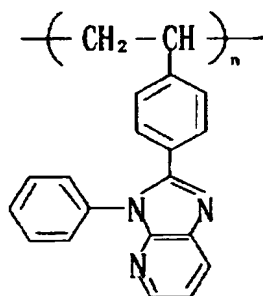
E-39



E-40



E-41

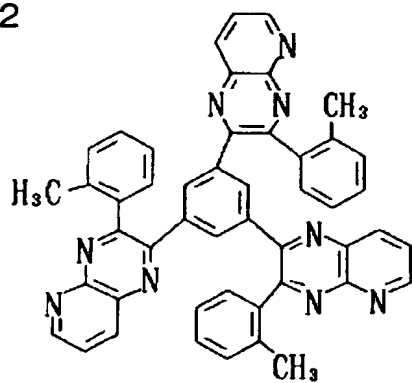


質量平均分子量 16,500
(ポリスチレン換算)

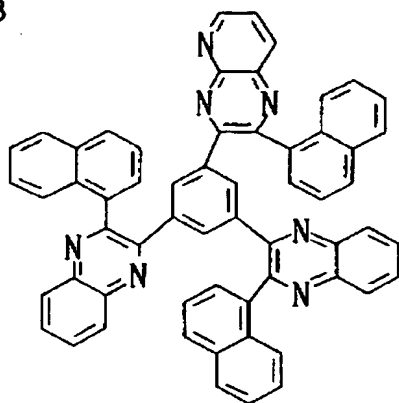
【0121】

【化 4 5】

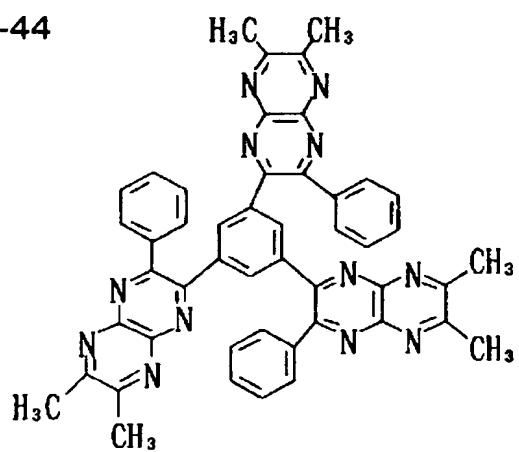
E-42



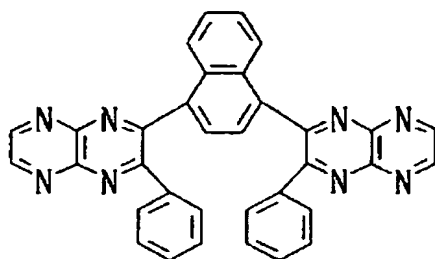
E-43



E-44



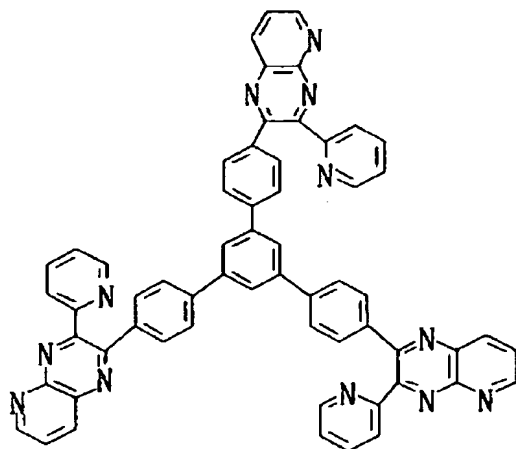
E-45



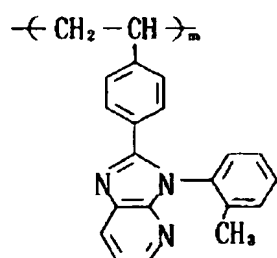
【0 1 2 2】

【化 4 6】

E-46

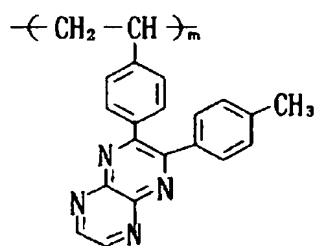


E-47



質量平均分子量 21,000 (ポリスチレン換算)

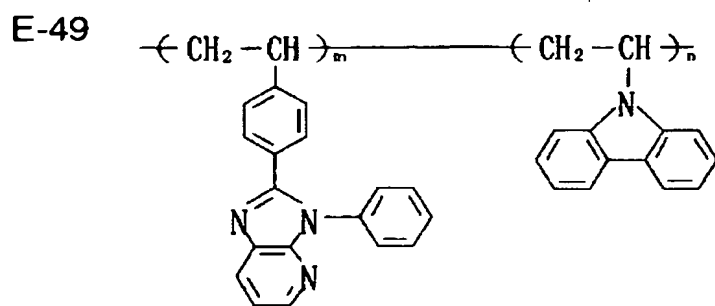
E-48



質量平均分子量 14,000 (ポリスチレン換算)

【0123】

【化 47】



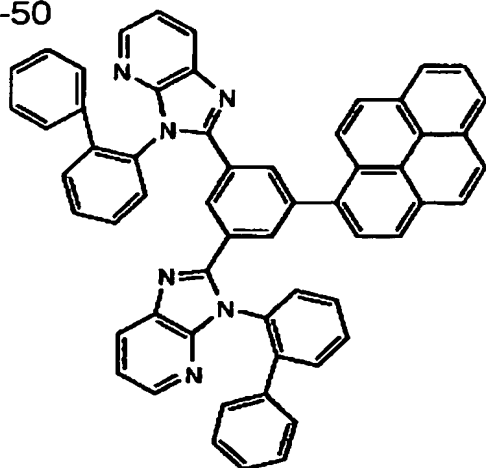
質量平均分子量 17,000 (ポリスチレン換算)

 $m : n = 1 : 1$ (モル比)

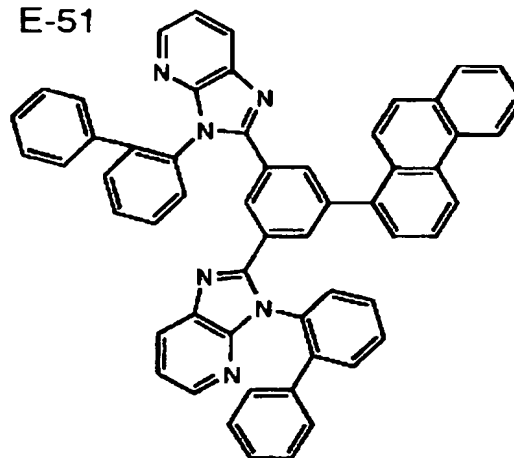
【0124】

【化 48】

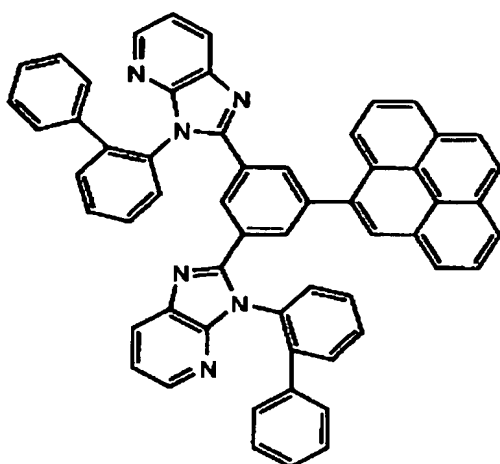
E-50



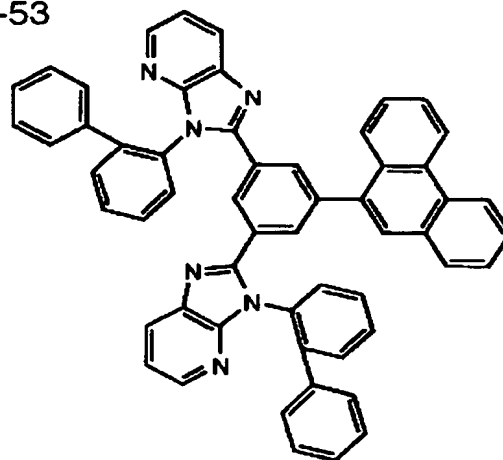
E-51



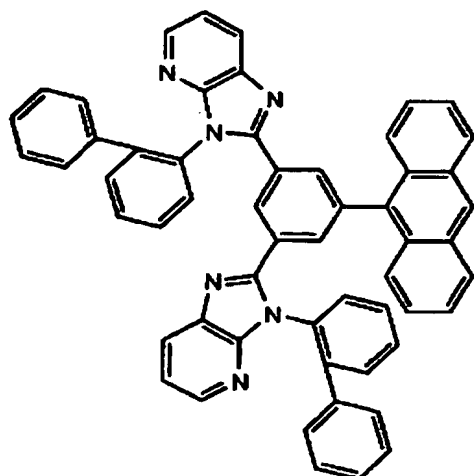
E-52



E-53



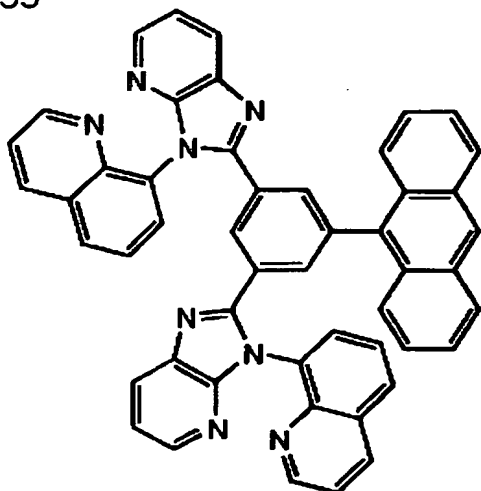
E-54



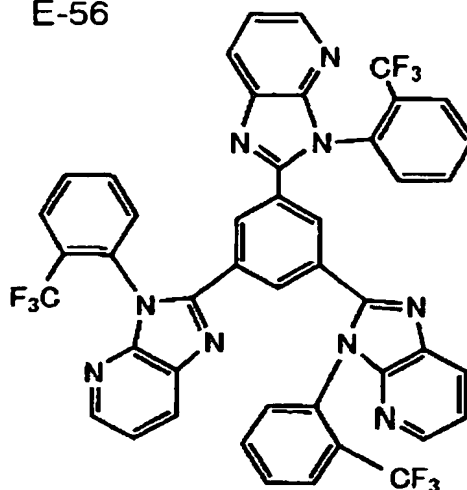
【0125】

【化 49】

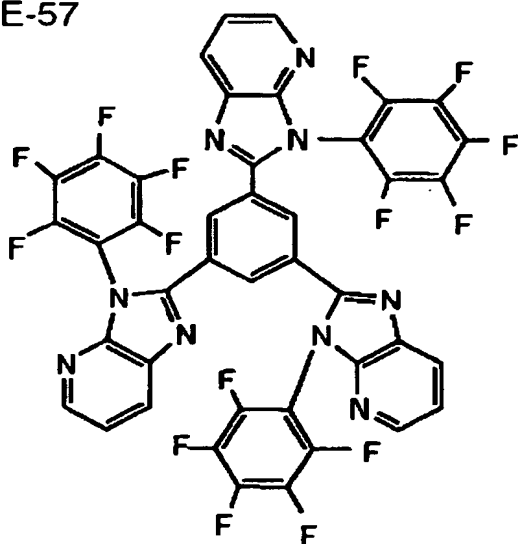
E-55



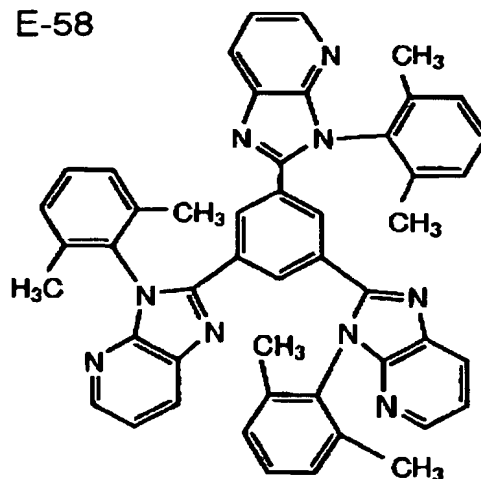
E-56



E-57



E-58



【0126】

一般式 (E-I) ~ (E-VII) で表される本発明の化合物は、特公昭 44-23025 号、同 48-8842 号、特開昭 53-6331 号、特開平 10-92578 号、米国特許 3,449,255 号、同 5,766,779 号、J. Am. Chem. Soc., 94, 2414 (1972)、Helv. Chim. Acta, 63, 413 (1980)、Liebigs Ann. Chem., 1423 (1982) などに記載の方法を参考にして合成できる。

【0127】

本発明の有機EL素子では、発光層と電子輸送層との間に他の層（好ましくは有機層、より好ましくは正孔阻止層）を有しないことを特徴とする。特に発光層と電子輸送層との間に正孔阻止層の有する有機EL素子は、発光特性が低下したり耐久性が悪化する原因となる。

【0128】

本発明の発光素子のシステム、駆動方法、利用形態等は特に限定されず、適宜公的な形態を採用してよい。

【0129】

本発明の発光素子における有機化合物層の形成方法は特に限定されず、抵抗加熱蒸着法、電子写真法、電子ビーム法、スパッタリング法、分子積層法、塗布法（スプレーコート法、ディップコート法、含浸法、ロールコート法、グラビアコート法、リバースコート法、ロールブラッシュ法、エアナイフコート法、カーテンコート法、スピンコート法、フローコート法、バーコート法、マイクログラビアコート法、エアードクターコート、ブレードコート法、スクイズコート法、トランスファーロールコート法、キスコート法、キャストコート法、エクストルージョンコート法、ワイヤーバーコート法、スクリーンコート法等）、インクジェット法、印刷法、転写法等の方法が可能である。中でも素子の特性、製造の容易さ、コスト等を勘案すると、抵抗加熱蒸着法、塗布法、転写法が好ましい。発光素子が2層以上の積層構造を有する場合、上記方法を組み合わせて製造することも可能である。

【0130】

塗布方法の場合、樹脂成分と共に溶解又は分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂等が挙げられる。

【0131】

本発明の発光素子は少なくとも発光層を含むが、この他に有機層として正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層等を有していてもよく、またこれらの各層は各々他の機能を備えたものであっても良い。さらに発光層と電子輸送層の間に他の層を挟持しない有機EL素子が好ましい。以下、各層の詳細について説明する。

【0 1 3 2】

正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであれば良く、具体例としてはカルバゾール、イミダゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ポリアリーールアルカン、ピラゾリン、ピラズロン、フェニレンジアミン、アリーールアミン、アミノ置換カルコン、スチリルアントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、シラザン、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン、芳香族ジメチリデン化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、有機金属錯体、遷移金属錯体、又は上記化合物の誘導体等が挙げられる。

【0 1 3 3】

正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μ mの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μ mであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。正孔輸送層は上述した材料の一種又は二種以上からなる単層構造であっても良いし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であっても良い。

【0 1 3 4】

電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入され得た正孔を障壁する機能のいずれかを有しているものであれば良い。その具体例としては、例えばトリアゾール、トリアジン、オキサゾール、オキサジアゾール、フルオレノン、アントラキノジメタン、アントロン、ジフェニルキノン、チオピランジオキシド、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン、ジスチリルピラジン、シロール、ナフタレンペリレン等の芳香環テト

ラカルボン酸無水物、フタロシアニン、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体、又は上記化合物の誘導体等が挙げられる。

【0135】

電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の一種又は二種以上からなる単層構造であっても良いし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であっても良い。

【0136】

本発明における発光層は、少なくとも一種のりん光材料と少なくとも一種の金属錯体を含有するが、他に複数の材料を併用していても良い。発光層に用いられる材料としては例えばベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾチアゾール、スチリルベンゼン、ポリフェニル、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、ナフタルイミド、クマリン、ペリレン、ペリノン、オキサジアゾール、アルダジン、ピラリジン、シクロペンタジエン、ビススチリルアントラセン、キナクリドン、ピロロピリジン、チアジアゾロピリジン、スチリルアミン、芳香族ジメチリディン化合物、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物、又は上記化合物の誘導体等が挙げられる。

【0137】

発光層は一層であっても、二層以上の多層であってもよい。発光層が複数の場合、各々の層が異なる発光色を発してもよい。発光層が複数の場合でも、各々の発光層はりん光材料と金属錯体のみから構成されるのが好ましい。発光層の膜厚は特に限定されないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。

【0138】

保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入る事を抑止する機能を有しているものであれば良い。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、S

i O₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等の金属酸化物、MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。

【0139】

保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（分子線エピタキシー）法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合（高周波励起イオンプレーティング法）、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、インクジェット法、印刷法、転写法、電子写真法を適用できる。

【0140】

陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層等に正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、又はこれらの混合物等を利用でき、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料である。具体例として酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ（ITO）等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物、又は積層物、ヨウ化銅、硫化銅等の無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロール等の有機導電性材料、及びこれらとITOとの混合物・積層物等が挙げられ、好ましくは導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高伝導性、透明性等の観点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～500 nmである。

【0141】

陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板等の上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカ等のバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは機械的強度を保つのに十分な厚みであれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2mm以上、好ましくは0.7mm以上のものを用いる。

【0142】

陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、イオンプレーティング法、化学反応法（ゾルーゲル法等）、スプレー法、ディップ法、熱CVD法、プラズマCVD法、ITO分散物の塗布等の方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げ、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理等が効果的である。

【0143】

陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層等に電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層等の陰極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、又はこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K、Cs等）又はそのフッ化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）又はそのフッ化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金、又はそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金、又はそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金、又はそれらの混合金属、インジウム、イッテルビウム等の希土類金属が挙げられ、好ましくは仕事関数が4eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金、又はそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金、又はそれらの混合金属等である。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm～1μmであり、更に好ま

しくは $100\text{ nm} \sim 1\text{ }\mu\text{ m}$ である。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法等の方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調製した合金を蒸着させても良い。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百 Ω/\square 以下が好ましい。

【0144】

本発明の発光素子の有機層は、ホール輸送層、発光層、電子輸送層の三層構造もしくは、さらにホールブロック層を備えた四層構造であることが好ましい。

【0145】

本発明の有機EL素子は、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、光通信等に好適に利用できる。

【0146】

【実施例】

以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

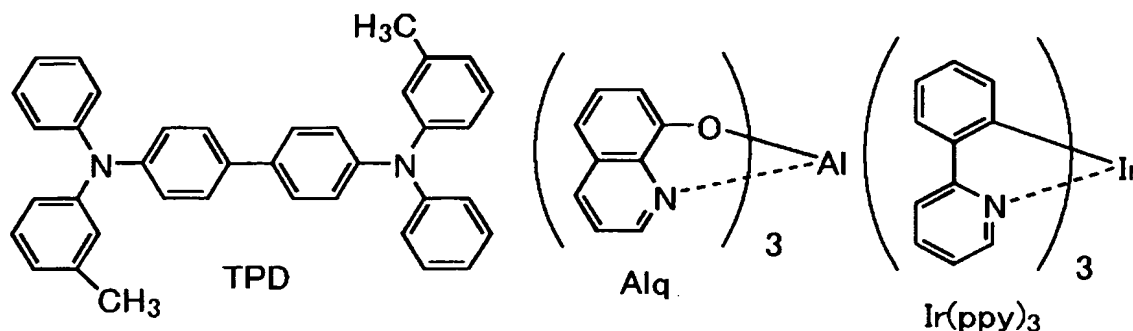
【0147】

(比較例1)

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、正孔輸送材料としてTPD (N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(m-トリル)ベンジジン) を 50 nm 蒸着し、この上にホスト材料として例示化合物58 (特開2002-305083号公報の段落番号[0034]に記載の化合物(H-4)) 及びりん光材料としてIr (ppy)₃ を 17:1 の質量比で 36 nm 蒸着し、さらにこの上に電子輸送材料としてAlq を 36 nm 蒸着した。得られた有機薄膜上にパターンニングしたマスク (発光面積が $4\text{ mm} \times 5\text{ mm}$ となる) を設置し、フッ化リチウムを 3 nm 蒸着した後アルミニウムを 60 nm 蒸着して比較例1の有機EL素子を作製した。

【0148】

【化 50】



【0149】

得られた有機EL素子に、東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400を用いて、直流定電圧を印加し、発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長とCIE色度座標を浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。その結果、CIE色度が $(x, y) = (0.324, 0.557)$ 、発光ピーク波長が521nmの緑色発光が得られ、最高輝度は3600cd/m²、外部量子効率は1.77%であった。

【0150】

(実施例1)

Alqに代えて電子輸送材料として例示化合物E-26を用いたいこと以外は上記比較例1と同様にして、実施例1の有機EL素子を作製した。比較例1と同様にして、実施例1の有機EL素子を評価した結果、CIE色度が $(x, y) = (0.304, 0.621)$ 、発光ピーク波長が517nmの緑色発光が得られ、最高輝度は23000cd/m²、外部量子効率は18.8%であった。

【0151】

比較例1及び実施例1により、金属錯体をホスト材料に用いたりん光発光性有機EL素子において、特定の電子輸送材料を用いると輝度及び効率が格段に向上することがわかった。

【0152】

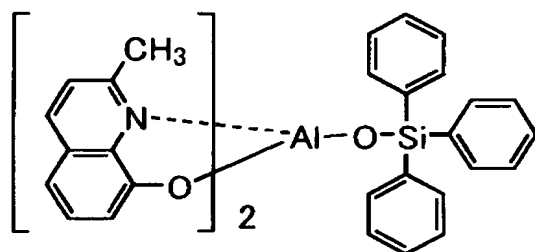
(比較例2)

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、正孔輸送材料としてTPD (N, N'

ージフェニル-N,N'-ジ(m-トリル)ベンジジン)を50nm蒸着し、この上にホスト材料として例示化合物58及びりん光材料としてIr(ppy)₃を17:1の質量比で36nm蒸着し、さらにこの上に正孔阻止層として下記化合物SA1qを5nm蒸着し、さらにこの上に電子輸送材料としてAlqを31nm蒸着した。得られた有機薄膜上にパターンニングしたマスク(発光面積が4mm×5mmとなる)を設置し、フッ化リチウムを3nm蒸着した後アルミニウムを60nm蒸着して比較例2の有機EL素子を作製した。比較例1と同様に比較例2の有機EL素子を評価したところ、CIE色度が(x,y)=(0.302,0.624)、発光ピーク波長が519nmの緑色発光が得られ、最高輝度は33000cd/m²、外部量子効率率は15.5%であった。

【0153】

【化51】



SA1q

【0154】

(実施例2)

実施例1及び比較例2の有機EL素子において、初期輝度を合わせた輝度半減時間を測定したところ、比較例2の有機EL素子が4時間であったのに対し、実施例1の有機EL素子は78時間であった。

【0155】

実施例2により、金属錯体をホスト材料に用いたりん光発光性有機EL素子において、発光層と電子輸送層の間に他の有機層を挟持しないものは駆動耐久性が格段に向上することがわかった。

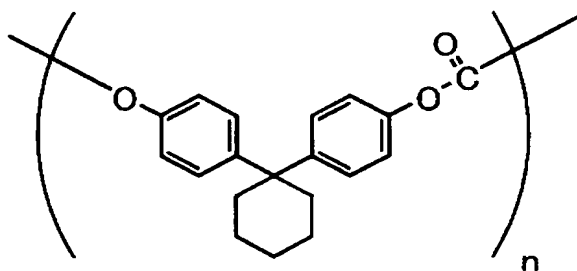
【0156】

(実施例 3)

洗浄したITO基板の上に、Baytron P (PEDOT-PSS (ポリエチレンジオキシチオフェン-ポリスリレンスルホン酸ドーパ体) 分散液/バイエル社製) をスピンコートにより塗布した後、100℃で1時間真空加熱乾燥し、ホール注入層 (膜厚約50 nm) を敷設した。この上に、バインダーとしてポリカーボネート樹脂Zを10 mg、ホスト材料として例示化合物1を25 mg、りん光材料としてIr (ppy)₃を3 mgをジクロロエタン3 mLに溶解した溶液をスピンコートにより塗布した (毎分5000回転、30秒)。有機層の総膜厚は100 nmであった。この上に電子輸送材料として例示化合物E-23を30 nm蒸着した。比較例1と同様に陰極を蒸着し、実施例3の有機EL素子を作製した。比較例1と同様にして実施例3の有機EL素子を評価した結果、CIE色度が(x,y)=(0.307,0.619)、発光ピーク波長が519nmの緑色発光が得られ、最高輝度は19800cd/m²、外部量子効率13.7%であった。

【0157】

【化52】




ポリカーボネート樹脂Z

【0158】

実施例3の結果より、金属錯体をホスト材料として用いたりん光発光性有機EL素子は、塗布プロセスにより作製した素子でも、高輝度・高効率の発光素子が得られることがわかった。

【0159】

【発明の効果】



本発明によれば、高い発光輝度、高い外部量子効率を示し、かつ耐久性に優れた発光素子を提供できる。さらに発光層と電子輸送層との間に他の層を有しない有機EL素子の場合、製造プロセスが簡略化でき、材料費の抑制が可能になる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 高発光輝度、高発光効率を示し、かつ耐久性に優れた有機EL素子を提供にあり、さらに発光層と電子輸送層との間に他の層を有しない簡便な構造を有する有機EL素子の提供する。

【解決手段】 一対の電極間に、発光層と電子輸送層とを少なくとも含む有機層を有する有機電界発光素子であって、発光層は、りん光発光材料と、ホスト材料として機能する金属錯体とを各々少なくとも一種含有し、電子輸送層は特定構造の化合物を含有する有機電界発光素子。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 2 - 3 6 5 2 8 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 5 2 0 1]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 1 4 日

[変更理由]

新規登録

住 所

神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地

氏 名

富士写真フイルム株式会社